



Estimation des sources et puits de méthane : bilan planétaire et impacts de la modélisation du transport atmosphérique

Robin Locatelli

► To cite this version:

Robin Locatelli. Estimation des sources et puits de méthane : bilan planétaire et impacts de la modélisation du transport atmosphérique. Sciences de la Terre. Université de Versailles-Saint Quentin en Yvelines, 2014. Français. NNT : 2014VERS0035 . tel-01225238

HAL Id: tel-01225238

<https://theses.hal.science/tel-01225238>

Submitted on 8 Dec 2015

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Université de Versailles Saint-Quentin-en-Yvelines

THÈSE DE DOCTORAT

Spécialité : Météorologie, océanographie et physique de l'environnement

**ESTIMATION DES SOURCES ET PUIITS DE
MÉTHANE : BILAN PLANÉTAIRE ET IMPACTS
DE LA MODÉLISATION DU TRANSPORT
ATMOPHÉRIQUE**

par **Robin LOCATELLI**

Pr. Guy CERNOGORA Président du jury

Dr. Frank DENTENER Rapporteur

Dr. Vincent-Henri PEUCH Rapporteur

Dr. Frédéric HOURDIN Examineur

Dr. Sander HOUWELING Examineur

Pr. Philippe BOUSQUET Directeur de thèse

Dr. Marielle SAUNOIS Invitée/Co-directrice de thèse

Dr. Sophie SZOPA Invitée/Correspondante CEA

Dr. Carole NAHUM Invitée/Correspondante DGA

REMERCIEMENTS

Tout d'abord, je tiens à remercier Guy Cernogora pour avoir accepté de présider mon jury de thèse. Je remercie également Vincent-Henri Peuch et Franck Dentener et tous les membres du jury pour avoir accepté de juger cette thèse. Merci aussi au CEA et à la DGA pour avoir financé ma thèse.

Je tiens à adresser un grand merci à Philippe Bousquet qui m'a encadré durant ces trois années de thèse et avec qui ce fut toujours un plaisir de travailler. Merci aussi à Marielle Saunois et Sophie Szopa pour leur soutien et leurs conseils. Je tiens aussi à remercier l'ensemble des personnes des équipes INVSAT, RAMCES et ABC³ avec qui j'ai collaboré, d'une manière ou d'une autre, pour faire avancer mon travail de thèse. Merci aussi à l'équipe climat du LMD pour m'avoir accueilli et transmis des connaissances précieuses sur LMDz.

Le doctorat constituant l'aboutissement des études universitaires, je veux également remercier les différentes personnes qui tout au long de ma scolarité m'ont transmis avec beaucoup d'énergie leur passion pour les sciences physiques. Je suis également très reconnaissant du temps que ces personnes ont pris pour m'expliquer et me transmettre leurs connaissances.

Un petit clin d'oeil aussi aux différents thésards, post-docs, CDD et autres avec qui j'ai partagé de bons moments autour d'un repas à la cantine, sur un terrain de rugby ou d'ultimate frisbee, derrière une table de ping-pong, dans un bar, sur des sentiers en petites foulées,...

Evidemment, un grand merci à mes parents qui m'ont toujours soutenu et encouragé au cours de ces différentes années. Un grand merci également à Fanny qui m'a toujours bien montré la voie. Et merci à Audrey pour les bons moments et le soutien quotidiens.

Paris, Janvier 2015

RÉSUMÉ

Une meilleure connaissance du cycle biogéochimique du méthane est un élément fondamental dans la compréhension du changement climatique actuel. La modélisation inverse est une des méthodes permettant d'estimer les sources et puits de méthane en combinant l'information venant d'observations atmosphériques, d'une connaissance *a priori* des flux de méthane, et d'un modèle de chimie-transport. Cependant, les erreurs liées à la modélisation du transport atmosphérique sont apparues comme une limitation de plus en plus dominante de cette méthode suite à l'augmentation du nombre et de la diversité des observations.

Après avoir montré que l'impact des erreurs de transport sur les inversions des flux de méthane pouvait être important, j'ai cherché à améliorer les capacités de la version offline de LMDz, modèle de transport utilisé pour simuler le transport atmosphérique dans le système inverse du LSCE. Pour cela, j'ai intégré des développements récents (paramétrisation de la convection profonde, de la diffusion verticale et du mélange non-local dans la couche limite) et raffiné la résolution horizontale et verticale.

En exploitant les différentes versions disponibles de LMDz, neuf inversions atmosphériques ont été réalisées, estimant les sources et puits de méthane entre 2006 et 2012. Deux périodes de fortes émissions ont été mises en évidence : en 2007 et en 2010, qui ont principalement été attribuées à des anomalies dans les régions tropicales et en Chine, où des événements climatiques majeurs ont été observés (Amérique du Sud et Asie du Sud-Est) et où le développement économique se poursuit à un rythme soutenu (Chine), même si les émissions de certains inventaires sont surestimées.

ABSTRACT

A better knowledge of the methane biogeochemical cycle is fundamental for a better understanding of climate change. Inverse modelling is one powerful tool to derive methane sources and sinks by optimally combining information from atmospheric observations of methane mixing ratios, from process-based models and inventories of methane emissions and sinks, and from a chemistry-transport model used to link emissions to atmospheric mixing ratios. However, uncertainties related to the modelling of atmospheric transport are becoming a serious limitation for inverse modelling due to the increasing number and type of observations.

After showing that the impact of transport errors on current atmospheric inversions could be significant, I tried to improve the representation of atmospheric transport in the inverse system used at LSCE. Thus, I have tested new physical parameterizations (deep convection, vertical diffusion and non-local transport within the boundary layer) in the LMDz model and adapted it to finer horizontal and vertical resolutions. These developments were integrated into the inverse system.

Nine inversions have been performed using the different versions of LMDz in order to estimate methane emissions over the period 2006-2012. Two years of strong methane emissions have been highlighted in 2007 and in 2010. These anomalies have been mainly attributed to anomalies in the Tropics and in China, where major climate events have been observed (Tropical South America and South East Asia) and where economic development is carrying on with a fast pace (China), even if emissions magnitude and trend reported in inventories are found to be overestimated.



Table des matières

Liste des figures	xi
Liste des tableaux	xv
1 Introduction	1
1.1 Le méthane dans les négociations autour du changement climatique . . .	1
1.2 Estimer les flux de méthane	3
1.3 Nécessité de la modélisation numérique	4
1.4 Objectifs et contenu des travaux de thèse	5
2 Le méthane dans le système climatique	9
2.1 Le méthane...	9
2.1.1 ...un gaz à effet de serre puissant	9
2.1.2 ...un acteur de la chimie atmosphérique	12
2.2 Le cycle du méthane	13
2.2.1 Les sources du méthane atmosphérique	13
2.2.2 Quelques sources du méthane atmosphérique en questions	15
2.2.3 Les puits du méthane atmosphérique	17
2.3 Les variations des concentrations atmosphériques de méthane...	18
2.3.1 ...depuis 800 000 ans	18
2.3.2 ...pour les années récentes	19
2.3.3 Le débat actuel sur la contribution des différentes sources et puits au bilan total du méthane atmosphérique	20
2.4 Les incertitudes actuelles sur les sources et puits de méthane	23
3 La modélisation inverse appliquée au méthane atmosphérique : principes théoriques et description de PYVAR	27
3.1 Exemple simple à deux dimensions	28
3.1.1 Estimation statistique	28
3.1.2 Approche bayésienne	30
3.2 La modélisation inverse des concentrations atmosphériques de méthane à l'échelle planétaire	33
3.2.1 Résolution du problème inverse	34
3.3 Le système inverse au LSCE : PYVAR-LMDz-SACS	35

3.3.1	Le modèle de chimie-transport : une version « offline » du modèle de circulation générale LMDz	36
3.3.2	Le modèle de chimie simplifié : SACS	37
3.3.3	Le module d'inversion : PYVAR	38
3.3.4	En quoi PYVAR-LMDz-SACS diffère-t-il des autres systèmes inverses ?	38
3.4	Les composantes des inversions de méthane atmosphérique	39
3.4.1	Connaissance <i>a priori</i> des sources de méthane	39
3.4.2	Connaissance <i>a priori</i> du puits chimique	42
3.4.3	Les données d'observation	42
3.4.4	Les matrices de variance/covariance des erreurs	45
3.5	Les limitations de la modélisation inverse	47
4	Impact de l'erreur transport sur les inversions de méthane des années 2000	51
4.1	Objectifs de l'étude	51
4.2	Principaux résultats	52
4.2.1	Erreurs liées à la modélisation du transport à l'échelle mondiale, régionale et locale	52
4.2.2	Echanges inter-hémisphériques et variabilité synoptique	52
4.2.3	Sensibilité au réseau de mesures et quantification des erreurs d'observation	53
4.3	Publication : « Impact of transport model errors on the global and regional methane emissions estimated by inverse modelling »	53
4.4	Etudes complémentaires	75
4.4.1	Diagnostics sur les erreurs d'observation	75
4.4.2	Comparaison de profils verticaux de méthane simulés par différents CTMs avec des mesures avions	75
5	La modélisation du transport atmosphérique de gaz traces dans LMDz	81
5.1	L'équation de transport d'une espèce trace dans l'atmosphère	82
5.2	Les paramétrisations physiques du transport sous-maille dans LMDz	83
5.2.1	La turbulence de couche limite	84
5.2.2	Le transport non-local dans la couche limite : le modèle du thermique	84
5.2.3	La convection profonde	85
5.2.4	Mise à jour du transport des traceurs dans LMDz	86
5.3	Présentation de l'étude sur la modélisation du transport atmosphérique de gaz traces par LMDz	86
5.3.1	Introduction	86
5.3.2	Principaux résultats	87
5.4	Publication : « Atmospheric transport and chemistry of trace gases in LMDz5B : evaluation and implications for inverse modelling »	89
5.4.1	Introduction	90
5.4.2	Modelling of atmospheric transport in LMDz	92
5.4.3	Evaluation of atmospheric transport in the PBL	94
5.4.4	Modelling of large-scale atmospheric transport	102
5.4.5	Conclusions and implications for inverse modelling of trace gas emissions and sinks	109
5.4.6	Acknowledgements	111
5.5	Etudes complémentaires	112
5.5.1	Simulations de la hauteur de couche limite	112
5.5.2	Simulations de la concentration de radon-222	118

6	Estimation des sources et puits de méthane entre 2006 et 2012 : bilan et influence du transport atmosphérique	121
6.1	Mise à jour du système inverse et inversions réalisées	122
6.1.1	Présentation du nouveau système inverse	122
6.1.2	Mise à jour du modèle adjoint et du modèle tangent-linéaire . . .	122
6.1.3	Performances du système	124
6.1.4	Les différentes inversions réalisées	125
6.2	Estimation des sources et puits de méthane pour 2010	126
6.3	Sensibilité des inversions de méthane aux paramétrisations physiques . .	131
6.3.1	Présentation	131
6.3.2	Principaux résultats	131
6.4	Publication draft : « Sensitivity of the recent methane budget to LMDz sub-grid scale physical parameterizations »	133
6.4.1	Introduction	133
6.4.2	Set-up of variational methane inversions	135
6.4.3	Consistency between surface-based and satellite-based inversions	138
6.4.4	Impact of physical parameterizations on global methane fluxes .	140
6.4.5	Impact of physical parameterizations on regional methane flux estimates	143
6.4.6	Conclusions	146
6.5	Variabilité interannuelle des émissions de méthane entre 2006 et 2012 .	148
6.5.1	La période 2006-2008	149
6.5.2	La période 2009-2012	151
6.5.3	Evaluation des estimations obtenues par modélisation inverse avec les flux simulés par un modèle de végétation	154
6.6	Tendance dans les émissions de méthane entre 2006 et 2012	159
6.7	Evaluation des inversions atmosphériques	162
6.7.1	Evaluation grâce à des mesures de surface	163
6.7.2	Evaluation grâce à des profils verticaux mesurés durant les campagnes « BARCA »	166
6.8	Le puits chimique par OH	168
7	Conclusions et perspectives	173
7.1	Conclusions	173
7.1.1	Le transport atmosphérique dans la version « offline » de LMDz .	173
7.1.2	L'impact des erreurs de transport sur les estimations des émissions de méthane par modélisation inverse	175
7.1.3	Estimation des sources et puits de méthane entre 2006 et 2012 .	175
7.2	Perspectives	177
7.2.1	La modélisation du transport atmosphérique dans la version « offline » de LMDz	177
7.2.2	Extension du système inverse à d'autres traceurs	179
7.2.3	Prise en compte de mesures isotopiques dans le système inverse .	181
7.2.4	Toujours plus de données...	183
7.2.5	Une approche multidisciplinaire à poursuivre	184
	Bibliographie	185
A	Cartes globales des PBLH simulées par LMDz-NP et LMDz-TD	207
B	Cycle saisonnier moyen de la PBLH en Europe à 00h et 12h UTC	209

Liste des figures

1.1	Séries temporelles pour l'année 2005 des concentrations de méthane simulées par un ensemble de modèles de chimie-transport de la communauté TransCom, en utilisant le même scénario d'émission et de puits chimique, pour la station de Gosan en Corée du Sud et du Pôle Sud	5
2.1	Rayonnement solaire incident, rayonnement terrestre émis et bandes d'absorption des principaux gaz à effet de serre présents dans l'atmosphère en fonction de la longueur d'onde	10
2.2	Forçage radiatif des principaux forçages anthropiques et naturels agissant sur le climat en 2011 relativement à 1750	11
2.3	Représentation schématique du cycle du méthane	14
2.4	Série temporelle de la concentration atmosphérique de méthane reconstituée à partir de la carotte de glace de EPICA/Dome C	18
2.5	Evolution de la concentration moyenne globale et du taux de croissance moyen de méthane dans l'atmosphère durant la période 1983-2012	20
2.6	Evolution des incertitudes sur les estimations des sources et puits de méthane par une approche montante ou descendante	23
3.1	Densités de probabilité des lois du flux de méthane <i>a priori</i> , optimisé grâce à une approche en moindres carrés pondérés et optimisé grâce à une approche bayésienne	32
3.2	Représentation schématique de la structure du modèle LMDz	36
3.3	Emissions anthropiques de méthane en 2008 selon l'inventaire EDGAR version 4.2FT2010	39
3.4	Emissions annuelles de carbone moyennées entre 1997 et 2009 dues aux feux de biomasse	40
3.5	Emissions de méthane par les zones humides selon le travail de Kaplan dans Bergamaschi et al. (2007)	41
3.6	Moyenne zonale de la concentration annuelle du radical OH entre 1010 et 50 hPa	42
3.7	Carte mondiale de la localisation des stations de surface, des tours et des mesures aéroportées dans différents réseaux	43
3.8	Carte mondiale des colonnes intégrées de méthane moyennées sur la période 2002-2011 pour SCIAMACHY à bord d'ENVISAT et pour GOSAT sur la période 2010-2011	45

3.9	Représentation schématique de l'impact des erreurs (erreurs de modélisation, erreurs d'observation) sur les concentrations atmosphériques dans un « monde réel » et sur l'estimation des flux dans un « monde numérique » . . .	48
4.1	Profils verticaux observés et simulés à 4 sites (Surgut (SUR) ; Sinton (TGC) ; Ile Molokaï (HAA) ; Santarem (SAN)) moyennés sur les périodes janvier-mars et juillet-septembre pour l'année 2007	77
4.2	Représentation du gradient latitudinal de CH ₄ en fonction du gradient vertical à différents sites	78
5.1	Comparaisons du transport atmosphérique d'un traceur idéalisé simulé par différentes versions unidimensionnelles de LMDz et par une LES réalisée avec Meso-NH	95
5.2	Comparaisons des tendances convectives et des tendances associées au modèle du thermique simulées par les différentes versions unidimensionnelles de LMDz	96
5.3	Comparaisons des boîtes à moustaches des concentrations de ²²² Rn observées et simulées par deux versions de LMDz à 18 stations de surface sur la période 2006-2011	98
5.4	Séries temporelles des concentrations horaires de ²²² Rn observées et simulées par TD et NP à Heidelberg en avril 2009	99
5.5	Séries temporelles des tendances de l'advection, de la diffusion verticale turbulente, de la convection et des thermiques à Heidelberg en avril 2009 simulées par NP et TD	100
5.6	Séries temporelles des concentrations horaires de ²²² Rn observées et simulées par TD et NP à Lutjewad en février 2008	101
5.7	Séries temporelles des tendances de l'advection, de la diffusion verticale turbulente, de la convection et des thermiques à Lutjewad en février 2008 simulées par NP et TD	101
5.8	Moyennes zonales et mensuelles des tendances des concentrations de SF ₆ liées au mélange de la couche limite, à la convection et à l'advection simulées par NP, TD et SP	102
5.9	Gradient latitudinal des concentrations de SF ₆ simulées par différentes versions de LMDz. Illustration de l'effet « rectifier » sur les concentrations de CO ₂ biosphériques	104
5.10	Séries temporelles des concentrations de CH ₄ simulées par NP, SP et TD pour 39 ans de simulations	109
5.11	Comparaison de la moyenne annuelle de la hauteur de la couche limite simulée par LMDz-NP avec les données IGRA à 00h UTC et à 12h UTC . . .	113
5.12	Comparaison du cycle saisonnier de la hauteur de PBL simulée par différents modèles TransCom avec les mesures de la PBLH reconstruites en utilisant les données IGRA	113
5.13	Cycle saisonnier moyen de la hauteur de la couche limite en journée pour différents modèles de transport et comparé à des PBLH reconstruites à partir des mesures lidars ou des données IGRA	115
5.14	Cycle saisonnier moyen de la hauteur de la couche limite de nuit simulé par différents modèles de transport et comparé à des PBLH reconstruites à partir des mesures lidars ou des données IGRA	116
5.15	Cycle diurne moyen de la hauteur de la couche limite en hiver simulé par différents modèles de transport et comparé à des PBLH reconstruites à partir des mesures lidars (à Cabauw et Trainou seulement) ou des données IGRA .	116

5.16	Cycle diurne moyen de la hauteur de la couche limite en été simulé par différents modèles de transport et comparé à des PBLH reconstruites à partir des mesures lidars (à Cabauw et Trainou seulement) ou des données IGRA .	117
5.17	Moyenne mensuelle des minimums journaliers de la concentration de ^{222}Rn à différentes stations de surface simulées par 6 modèles et mesurées	118
5.18	Cycle diurne moyen des concentrations de ^{222}Rn en été (juin, juillet, août) pour 2011 simulé par différents modèles de transport et comparé avec des mesures de ^{222}Rn	119
6.1	Description des caractéristiques du modèle de transport et de la résolution horizontale et verticale utilisées dans les différentes versions du système inverse	123
6.2	Estimation des flux de méthane pour l'année 2010 à l'échelle globale et pour différentes régions	127
6.3	Carte des 12 différentes régions utilisées pour l'étude des estimations des émissions de méthane par modélisation inverse	128
6.4	Carte de la localisation des stations de surface dans les réseaux « Background » et « Extended »	137
6.5	Distribution méridionale du biais entre les concentrations de CH_4 simulées à partir des flux optimisés par les inversions satellites et les concentrations mesurées	139
6.6	Profils verticaux des concentrations de méthane simulés par LMDz-39 et LMDz-19 et comparés à la climatologie de HALOE	140
6.7	Estimations des flux de méthane pour 2010 à l'échelle planétaire	141
6.8	Estimations des flux de méthane dans 12 régions et pour trois versions du modèle (LMDz-TD, LMDz-SP et LMDz-NP) en utilisant trois types de données (BG, EXT et PR-LEI)	144
6.9	Moyenne glissante des émissions désaisonnalisées entre 2006 et 2012 pour les 9 types d'inversions à l'échelle globale, dans les tropiques, dans les régions extra-tropicales de l'hémisphère nord et de l'hémisphère sud	149
6.10	Anomalie des émissions de méthane pour l'échelle globale, les tropiques, les régions extra-tropicales des hémisphères nord et sud en prenant la période juin 2009 à juin 2011 comme période de référence	152
6.11	Anomalie des émissions de méthane pour l'Amérique du Sud tropicale, l'Asie du Sud-Est, la Chine et l'Europe en prenant la période juin 2009 à juin 2011 comme période de référence	153
6.12	Evolution temporelle de l'indice El Niño relativement à la région Niño 3.4 entre 2000 et 2014	154
6.13	Anomalie des émissions de CH_4 par les zones humides simulées par deux versions du modèle ORCHIDEE utilisant deux versions différentes du produit de Schroeder et al. (2010) relatif à l'étendue des zones humides à l'échelle globale et en Amérique du Sud tropicale	158
6.14	Comparaison des profils verticaux simulés par trois versions de LMDz avec les profils mesurés lors des campagnes BARCA-A et BARCA-B	166
6.15	Séries temporelles des concentrations de CH_4 <i>a priori</i> , optimisées et mesurées à Alert (Canada) et à Cape Grim (Australie) entre 2006 et 2012	168
6.16	Série temporelle de la concentration mesurée, <i>a priori</i> et <i>a posteriori</i> de méthyl-chloroforme (CH_3CCl_3) à Harvard Forest (Etats-Unis) entre 2006 et 2012	169
6.17	Moyenne glissante sur 12 mois de la concentration troposphérique de OH <i>a priori</i> et optimisée dans les 3 versions du système	170

7.1	Moyenne zonale des concentrations atmosphériques de SF ₆ simulées par le modèle de chimie-transport, MOZART, en utilisant trois forçages météorologiques différents (NCEP/NCAR, GEOS-5 et GFS)	178
7.2	Ecart du gradient IH des émissions de méthane de différents modèles par rapport au gradient IH de l'ancienne version de PYVAR-LMDz-SACS tracé en fonction de l'écart du gradient IH des concentrations de SF ₆ à la surface des différents modèles par rapport à celui de l'ancienne version de LMDz . .	179
7.3	Estimations des flux de CO ₂ à l'échelle continentale pour l'année 2010 utilisant le système PYVAR-LMDz-TD-SACS et PYVAR-LMDz-NP-SACS	180
7.4	Représentation de la signature isotopique des principales sources de méthane	182
A.1	Comparaison des PBLH simulées par LMDz-NP et LMDz-TD avec les données IGRA en janvier et en août à 00h UTC	207
A.2	Comparaison des PBLH simulées par LMDz-NP et LMDz-TD avec les données IGRA en janvier et en août à 12h UTC	208
B.1	Cycles saisonniers moyens de la PBLH à 00h UTC simulées par différents modèles de transport dont LMDz-TD et LMDz-NP à 27 stations d'Europe occidentale	209
B.2	Cycles saisonniers moyens de la PBLH à 12h UTC simulées par différents modèles de transport dont LMDz-TD et LMDz-NP à 27 stations d'Europe occidentale	210

Liste des tableaux

3.1	Caractéristiques des trois satellites (SCIAMACHY, GOSAT et IASI) fournissant des mesures de la colonne totale de méthane	44
5.1	Configurations des différentes versions de LMDz en détaillant les paramétrisations physiques et la résolution utilisées	84
5.2	Description des paramétrisations physiques utilisées dans les trois versions de LMDz	94
5.3	Description des différentes stations de surface utilisées pour l'évaluation des simulations des concentrations de ^{222}Rn	98
5.4	Gradient vertical des concentrations de SF_6 dans les trois versions de LMDz	105
5.5	Pourcentage de la masse totale de SF_6 dans quatre parties de l'atmosphère	107
6.1	Comparaison des termes de l'égalité définissant l'adjoint des routines du modèle des thermiques et de la convection profonde	124
6.2	Performances des différents versions de LMDz pour une année de simulation directe et performances des différentes versions de PYVAR pour une optimisation des flux de méthane sur une année	124
6.3	Bilan des inversions de méthane pour 2010 à l'échelle planétaire et pour les douze différentes régions présentées sur la carte de la figure 6.3	129
6.4	Estimation des émissions hémisphériques de méthane pour 2010	142
6.5	Dispersion des émissions régionales de méthane en 2010	146
6.6	Bilan des sources et puits de méthane estimés par modélisation inverse entre 2006 et 2012 pour l'ensemble de la surface terrestre, les régions extratropicales de l'hémisphère nord et de l'hémisphère sud et des régions tropicales	151
6.7	Bilan des émissions de méthane par les zones humides entre 2006 et 2012 à l'échelle globale, dans les tropiques, en Amérique du Sud tropicale, en Asie du Sud-Est et en Afrique simulées par ORC-1 et ORC-2	156
6.8	Tendances des émissions de méthane entre 2006 et 2012 pour différentes régions	160
6.9	Biais entre les concentrations simulées, qui utilisent les flux optimisés par les 9 différentes inversions, et les concentrations mesurées à diverses stations de surface assimilées et non-assimilées	164

6.10	Racine carrée de l'erreur quadratique moyenne entre les concentrations simulées, qui utilisent les flux optimisés par les 9 différentes inversions, et les concentrations mesurées à diverses stations de surface assimilées et non-assimilées	165
6.11	Concentrations de méthane dans la couche limite et la troposphère libre simulées par les différentes versions de LMDz utilisant les flux optimisés des inversions de surface (BG et EXT) et observées au cours de la campagne de mesure BARCA-A en novembre 2008	167
6.12	Concentrations de méthane dans la couche limite et la troposphère libre simulées par les différentes versions de LMDz utilisant les flux optimisés des inversions de surface (BG et EXT) et observées au cours de la campagne de mesure BARCA-B en mai 2009	167

Introduction

1.1 Le méthane dans les négociations autour du changement climatique

Les enjeux autour du changement climatique ont figuré sur la table des négociations des pays du monde depuis au moins 1992 lorsque la Convention Cadre sur le Changement Climatique s'est déroulée à Rio de Janeiro. Les décennies suivantes ont vu alterner des périodes d'avancées (ratification du protocole de Kyoto en 1997) et de recul (échec des négociations à la conférence de Copenhague en 2009) par rapport à la signature d'un accord international en vue de lutter contre le changement climatique impliquant tous les gros émetteurs de gaz à effet de serre, principal forçage du changement climatique.

Les négociations entre les différents pays de la planète sur les questions climatiques peuvent être analysées en utilisant des analogies à la théorie des jeux pour expliquer les raisons des échecs. En particulier, le changement climatique peut être comparé au « dilemme du prisonnier » énoncé par Albert Tucker en 1950.

Le dilemme du prisonnier a été initialement formulé pour illustrer l'interrogatoire de deux prisonniers qui ont commis ensemble un délit et sont arrêtés et placés dans des cellules séparées sans moyen de communication entre eux. Le juge qui les interroge instaure les règles de négociations suivantes :

- si l'un des deux prisonniers dénonce l'autre, il sera libre et l'autre écoperà de la peine maximale (vingt ans par exemple) ;
- si les deux prisonniers se dénoncent l'un et l'autre, ils seront tous deux condamnés à une peine moyenne (dix ans par exemple) ;
- si aucun des deux prisonniers ne dénonce l'autre, la peine sera minimale (cinq ans par exemple).

Par conséquent, la « meilleure » solution pour l'intérêt collectif des deux prisonniers serait de se taire puisque dans ce cas là ils n'écoperaient que de cinq ans de prison. Cependant, à titre individuel, le prisonnier qui se tait s'expose à ce que l'autre le dénonce et ressorte libre. De plus, comme aucun des deux prisonniers ne peut savoir ce que va faire l'autre, il est fort probable dans ces conditions que les prisonniers choisiront tous deux la dénonciation, et écoperont donc chacun de dix ans de prison. En d'autres mots, la solution la plus rationnelle pour chacun des individus pris séparément (dans le doute, dénoncer l'autre) est la plus mauvaise au niveau collectif.

Dans le contexte du changement climatique, on retrouve un dilemme du même ordre dans les négociations entre les pays qui essaient de trouver un terrain d'entente sur la réduction des émissions de gaz à effet de serre pour lutter contre le changement climatique. Considérons deux pays (A et B) qui cherchent à trouver un accord commun pour lutter contre le changement climatique, voici les opportunités qui se présentent à eux :

- si l'un des deux pays ne souhaite pas faire d'efforts pour réduire ses émissions en vue de lutter contre le changement climatique, il n'améliorera pas sa situation face au changement climatique et pourrait faire subir à l'autre pays les conséquences de ses non-décisions
- si les deux pays ne prennent aucune décision pour lutter contre le changement climatique, l'ampleur du changement climatique et le coût sociétal à long terme seront maximaux
- au contraire, si les deux pays prennent des mesures de réduction des émissions des gaz à effet de serre, ils bénéficieront tous les deux de leurs efforts communs et contribueront à une baisse des effets du changement climatique à un coût immédiat probablement important mais partagé

On résume les différentes options des négociations qui s'offrent aux deux pays dans le tableau ci-dessous. C'est une version du « dilemme du prisonnier » adapté au changement climatique.

	Le pays A réduit ses émissions de gaz à effet de serre	Le pays A ne réduit pas ses émissions de gaz à effet de serre
Le pays B réduit ses émissions de gaz à effet de serre	très bénéfique pour le changement climatique	B subit les conséquences des non-décisions de A // A bénéficie des efforts consentis par B
Le pays B ne réduit pas ses émissions de gaz à effet de serre	A subit les conséquences des non-décisions de B // B bénéficie des efforts consentis par A	très néfaste pour le changement climatique

Cependant, les décisions politiques à prendre et les efforts à faire pour lutter contre le changement climatique sont généralement vus comme un frein pour le développement économique d'un pays étant donné le modèle économique dominant fondé sur la croissance. Ainsi, on comprend bien que la meilleure décision à l'échelle du pays (ne pas prendre de décisions et continuer son développement) n'est pas la meilleure décision pour les deux pays pris collectivement. En effet, il est très probable que le pays A et le pays B mis face à cette situation décideraient de ne pas prendre de décisions pour réduire les émissions de gaz à effet de serre dans le but de ne pas freiner leur développement économique, tout en espérant que d'autres pays prennent des décisions contre le changement climatique et qu'ils puissent alors en bénéficier indirectement. On aboutirait alors à la pire solution où aucun accord sur la réduction des émissions de gaz à effet de serre ne serait signé. Cet écueil est devant nous et il n'est pas encore gagné aujourd'hui, à la fin de l'année 2014, que la COP21 (21^e Conférence des Parties de la Convention-cadre des Nations Unies sur le changement climatique) qui se réunira fin 2015 à Paris aboutisse à un accord de l'envergure souhaitée eu égard aux enjeux du changement climatique.

Un autre aspect qui est souvent évoqué pour expliquer l'échec des négociations

précédentes sur le changement climatique est la durée de vie des gaz à effet de serre anthropiques dans l'atmosphère, notamment du dioxyde de carbone (plus de 100 ans), qui rend les décisions politiques pour lutter contre le changement climatique en inadéquation avec les durées usuelles des mandats politiques. A cause de l'inertie atmosphérique du dioxyde de carbone, les effets de mesures de réductions prises aujourd'hui ne seront mesurables que dans plusieurs décennies (IPCC, 2013 : [Summary for Policymakers](#)). Par ailleurs, limiter l'augmentation de température au cours du 21^e siècle demandera de s'attaquer aussi aux autres gaz à effet de serre comme le méthane (Shindell, 2001). Depuis une dizaine d'années environ, un fort intérêt s'est concentré sur le méthane, second gaz à effet de serre anthropique. Il présente notamment l'avantage d'avoir un temps de vie plus court (une dizaine d'années) que le dioxyde de carbone et de participer également à la photo-chimie de l'ozone. Ainsi, réduire les émissions de méthane pourrait à la fois avoir l'avantage de lutter contre le changement climatique à des horizons temporels relativement courts (plus en adéquation avec les résultats attendus des décisions politiques actuelles) et aussi de limiter les pics de pollution (notamment à l'ozone, (Fiore et al., 2002)) qui se rencontrent très régulièrement dans certaines métropoles.

Cependant, prendre des décisions internationales de réduction des émissions de méthane nécessite de bien comprendre le cycle biogéochimique contemporain du méthane. Ce cycle représente les échanges de méthane entre les réservoirs pertinents pour la période actuelle : l'atmosphère, les surfaces continentales et les océans. L'estimation des flux d'échanges entre ces réservoirs est donc une question scientifique importante. En outre, la mise en place d'accords internationaux pour réduire les émissions de méthane induit le besoin d'une quantification précise de ces émissions à l'échelle des pays. Dans ce contexte, estimer les sources et puits de méthane est un enjeu important dans le cadre général du changement climatique en cours.

1.2 Estimer les flux de méthane

La mesure directe est l'approche qui paraît la plus naturelle pour estimer les flux de méthane vers l'atmosphère. Cependant, la grande hétérogénéité des sources émettrices de méthane rend très locale une mesure des flux. De plus la grande variabilité temporelle de certaines sources de méthane nécessiterait des mesures à très hautes fréquences. Ainsi, les mesures directes des flux de méthane sont peu nombreuses et ne fournissent, actuellement, que des informations à des échelles locales (1 m² à 1 km²). Cependant, ces mesures sont très précieuses pour calibrer les modèles de végétation dynamique qui calculent les émissions de méthane à partir d'une représentation des processus émetteurs (Ringeval et al., 2010). Ces modèles permettent de faire le lien entre les échelles locales et régionales/globale, et participent à ce qu'on appelle l'approche montante (« bottom-up » en anglais). D'autres modèles, appelés modèles inverses, utilisent des observations atmosphériques pour contraindre les flux de méthane. Cette méthode entre dans ce qu'on appelle l'approche descendante (« top-down » en anglais).

On parle d'approche montante lorsqu'on cherche à connaître la quantité de méthane émise dans l'atmosphère en quantifiant les émissions de méthane à la surface par un processus ou un ensemble de processus. Ainsi, on s'intéresse à ce qui se passe en surface (en bas/au départ) pour comprendre les concentrations atmosphériques (en haut/après transport et transformation dans l'atmosphère). Diverses méthodes sont utilisées pour quantifier ces émissions : les émissions par les zones humides sont, par exemple, estimées grâce à des modèles biogéochimiques qui contiennent différentes

paramétrisations construites à partir de connaissances des processus biogéochimiques contribuant à l'émission de méthane. Les émissions anthropiques (par exemple, les émissions liées à la culture du riz, à l'utilisation des énergies fossiles, à l'exploitation du bétail, à la fermentation des déchets) sont généralement estimées à partir de statistiques d'utilisation de l'énergie par les industries, les particuliers, les activités agricoles et la connaissance des facteurs d'émissions de méthane des différents secteurs de l'énergie.

On parle d'approche descendante lorsqu'on utilise des observations de concentrations atmosphériques pour quantifier les émissions de surface grâce à l'apport d'un modèle de chimie-transport qui permet de relier les émissions à la surface aux observations. En effet, les mesures des concentrations atmosphériques en un point de l'atmosphère sont le reflet de l'émission d'une certaine quantité de méthane à la surface qui subit ensuite divers processus physico-chimiques dans l'atmosphère. Ainsi, on comprend bien qu'une représentation correcte de ces processus physico-chimiques peut permettre de déterminer la provenance et la quantité réelle de méthane émis en surface. Contrairement à l'approche montante, l'approche descendante ne requiert pas de connaître explicitement les processus biogéochimiques à l'origine des émissions de méthane (il est même théoriquement possible de détecter des émissions de méthane sans savoir si elles sont d'origines biogéniques ou non), mais elle requiert de représenter correctement les processus atmosphériques qui « mélangent et atténuent » le signal des flux de méthane transmis au lieu de la mesure. La représentation de ces processus s'effectue généralement grâce à un modèle numérique.

1.3 Nécessité de la modélisation numérique

La mise en oeuvre des approches montantes et descendantes s'appuie fortement sur la modélisation numérique. En effet, on cherche à mieux comprendre le cycle biogéochimique du méthane dans un système très complexe (interactions physico-chimiques multiples, processus non-linéaires, système naturel, imbrication d'échelles) pour les échelles régionales à planétaires, et avec une précision spatiale et temporelle la plus fine possible. La complexité d'un tel système et l'impossibilité de le suivre continuellement et à toutes les échelles impose l'utilisation de modèles numériques. Historiquement, la modélisation numérique en sciences atmosphériques est née avec l'arrivée des premiers ordinateurs en 1950 et avait pour but principal de faire des prévisions météorologiques. Ce n'est qu'à partir des années 1980 que l'on a commencé à utiliser les modèles numériques pour étudier l'évolution du climat et pour acquérir des connaissances sur des processus physiques encore mal compris.

La modélisation inverse fait un double appel à la modélisation numérique. En premier lieu, il s'agit de représenter le transport et la chimie atmosphérique de gaz traces en s'appuyant sur une traduction numérique des équations régissant l'évolution de l'atmosphère. En second lieu, il s'agit d'optimiser les flux d'échange de méthane grâce à la mise en équations numériques de la théorie des méthodes inverses. Dans ce cadre, les interprétations des inversions atmosphériques pour la compréhension des cycles biogéochimiques doivent prendre en compte les erreurs liées à la modélisation numérique. Notamment, la représentation du transport et de la chimie atmosphérique des gaz traces est une source d'incertitude réelle puisqu'elle repose sur la simplification par discrétisation spatiale et temporelle d'un système complexe.

La figure 1.1 donne des illustrations de l'erreur transport impactant la modélisation des concentrations de méthane à Gosan en Corée du Sud (à gauche) et au Pôle Sud

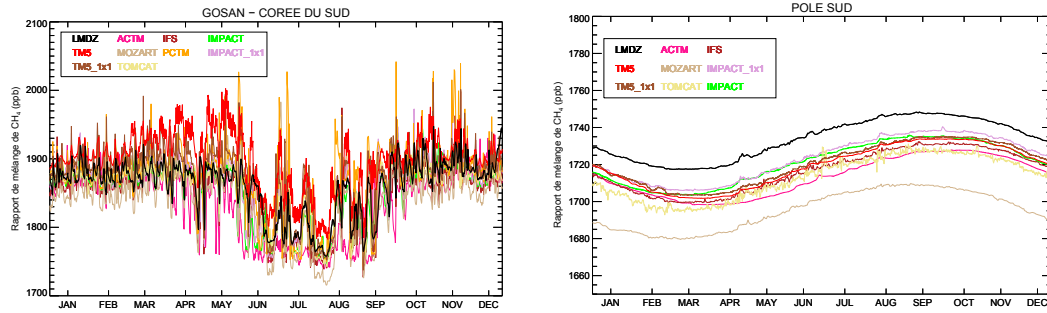


FIGURE 1.1: Séries temporelles pour l'année 2005 des concentrations de méthane simulées par un ensemble de modèles de chimie-transport de la communauté TransCom, en utilisant le même scénario d'émission et de puits chimique, pour la station de Gosan en Corée du Sud (à gauche) et du Pôle Sud (à droite). La simulation obtenue avec LMDz est représentée en noire. Ces simulations ont été réalisées pour le projet d'intercomparaison de TransCom présenté dans [Patra et al. \(2011\)](#).

(à droite). Gosan étant situé à proximité des zones de fortes émissions de la Chine, on note une grande variabilité dans les séries temporelles, qui peuvent être modélisées d'une manière très différente selon les modèles. Ce constat laisse penser que la manière dont une certaine quantité de méthane émise à la surface est mélangée dans la couche limite diffère grandement entre les différents modèles. Les concentrations de méthane simulées à Gosan sont également impactées par l'oscillation de la zone de convergence inter-tropicale (ZCIT) qui apporte des masses d'air de l'hémisphère sud appauvries en méthane durant les mois de l'été boréal. La représentation de cette caractéristique du transport à grande échelle est également très différente selon les modèles. Dans une zone peu influencée par de fortes émissions de méthane, comme c'est le cas au Pôle sud, on note également des différences notables dans les concentrations de méthane simulées qui peuvent atteindre jusqu'à ~ 50 ppb. Contrairement à ce qu'on voit à Gosan, ces erreurs semblent constantes au cours de la période, laissant penser à des incertitudes liées à des processus de grandes échelles. Ainsi, à travers l'analyse de deux simulations échantillonnées à deux stations de surface dont les caractéristiques sont très différentes, on note que l'ordre de grandeur de l'erreur de transport est important. Il semble assez clair que l'utilisation de ces modèles dans un système inverse puisse mener à des estimations des émissions de méthane très différentes. Ainsi, étudier et chercher à améliorer la représentation du transport atmosphérique semble essentiel lorsqu'on cherche à mieux comprendre le cycle du méthane en faisant appel aux techniques de la modélisation inverse.

1.4 Objectifs et contenu des travaux de thèse

L'estimation des sources et puits de méthane par modélisation inverse du transport et de la chimie atmosphérique pour les années récentes est la question scientifique qui m'est posée au début de cette thèse. Le fil conducteur en est la représentation du transport atmosphérique dans les modèles de chimie-transport. En effet, comme on l'a vu dans la section précédente, au moment où j'ai démarré mon travail de thèse, [Patra et al. \(2011\)](#) avaient montré l'importance des erreurs de transport sur les concentrations atmosphériques simulées par un ensemble de modèles de chimie-transport. Depuis [Gurney et al. \(2002\)](#), il était connu que les deux facteurs principaux

limitant la réduction des incertitudes sur l'estimation des flux de gaz à effet de serre par inversion atmosphérique sont le nombre et la couverture des observations d'une part, et les erreurs liées à la représentation du transport atmosphérique d'autre part. Avec la densification spatiale et temporelle des réseaux de surface et l'arrivée des satellites (ENVISAT, GOSAT et MetOp-A) reconstruisant les colonnes atmosphériques de méthane depuis l'espace, la pression sur la qualité de représentation du transport atmosphérique augmente. Il a donc été naturel, au début de ma thèse, de m'intéresser aux erreurs dues au transport atmosphérique avant de m'intéresser à l'estimation des flux de méthane par modélisation inverse. Cette problématique est apparue d'autant plus saillante que la version du modèle de circulation générale de l'atmosphère LMDz utilisée au LSCE à mon arrivée pour les inversions atmosphériques (LMDz, (Hourdin et al., 2006)) souffrait de défauts identifiés. J'ai donc mis en oeuvre et évalué une nouvelle version du modèle de transport. Cela m'a permis de passer ensuite à la phase d'inversion des flux de méthane à part entière en m'appuyant sur un modèle de transport atmosphérique amélioré.

Dans ce contexte et dans le but de déterminer les sources et puits de méthane atmosphérique par modélisation inverse pour la période 2006-2012, il a été légitime de se questionner sur plusieurs points :

- quels sont les impacts des erreurs de modélisation du transport atmosphérique sur les inversions atmosphériques actuelles ?
- quel est l'apport de l'implémentation de nouvelles paramétrisations physiques sur la représentation du transport de gaz traces dans LMDz ?
- quelles sont les améliorations apportées sur les inversions atmosphériques de méthane par ces paramétrisations physiques ?
- que nous apprennent les inversions atmosphériques actuelles sur le cycle du méthane pour la période 2006-2012 ?

Le choix de la période d'étude a été guidé par deux aspects. En premier lieu, après pratiquement une décennie de stagnation pour des raisons encore largement débattues (chapitre 2), le méthane atmosphérique a recommencé à augmenter dans l'atmosphère depuis 2007. Cette augmentation semble se poursuivre avec des fluctuations d'une année sur l'autre. L'analyse de la période 2006-2012 est une question scientifique intéressante et encore très largement ouverte. En second lieu, il était nécessaire de pouvoir mener plusieurs inversions en utilisant les différentes versions du modèle LMDz et différents jeux de données. Limiter la période d'étude à 7 ans nous a permis de mener ces travaux dans des délais de simulations raisonnables et compatibles avec les contraintes de la thèse.

Avant de présenter en détails les différents résultats qui permettent de répondre à ces différentes questions scientifiques, on présente le contexte entourant ces travaux de thèse en donnant des informations essentielles sur le méthane atmosphérique (chapitre 2) et la modélisation inverse (chapitre 3) pour permettre une meilleure compréhension de la suite de la thèse. Ainsi, on détaille les différentes caractéristiques du méthane atmosphérique et la manière selon laquelle le méthane peut impacter le système climatique. En particulier, on dresse un bilan des différentes composantes du cycle du méthane (section 2.2) qui impactent l'évolution des niveaux de méthane dans l'atmosphère depuis 800 000 ans jusqu'à aujourd'hui (section 2.3). L'intérêt de la thèse se portant exclusivement sur la période récente, on dresse alors un bilan de l'état de l'art des connaissances sur les variations récentes des concentrations atmosphériques de méthane (section 2.3.3) qui montre que la contribution des différentes sources et puits de méthane est mal comprise (section 2.4).

Comme il a été introduit précédemment, la modélisation inverse est l'une des méthodes permettant d'estimer les sources et puits de méthane. Elle s'appuie sur des principes théoriques complexes qui peuvent être introduits à travers un exemple simple (section 3.1), avant de s'intéresser à l'application de la modélisation inverse au système atmosphérique à l'échelle planétaire (Section 3.2). Le système inverse développé au LSCE (section 3.3) s'appuie sur ces principes théoriques et différents composants spécifiques (section 3.4) qui permettent d'optimiser les concentrations atmosphériques de méthane pour estimer les sources et puits de méthane. Cependant, plusieurs limitations à cette méthode existent (section 3.5). C'est notamment le cas des incertitudes liées à la représentation du transport atmosphérique. Par conséquent, notre première étude (chapitre 4) a cherché à quantifier l'impact des erreurs de transport sur les inversions de méthane des années 2000. On donne également des compléments à cette étude en analysant les erreurs d'observation utilisées dans les inversions atmosphériques (section 4.4) et en participant à une comparaison de profils verticaux de méthane simulés par différents modèles de chimie-transport avec des mesures avions (section 4.4.2). Ces différentes études confirment que les erreurs de transport peuvent être grandes et impacter fortement les estimations par modélisation inverse.

A partir de ce constat, on a cherché à améliorer la version transport du modèle LMDz (chapitre 5) qui est utilisée dans le système inverse du LSCE. En testant différentes paramétrisations physiques et différentes résolutions du modèle, la modélisation du transport de gaz traces dans LMDz a été fortement modifiée et améliorée (section 5.3). Des intercomparaisons de modèles de chimie-transport sur la modélisation de la hauteur de la couche limite et du transport du radon nous ont également permis de compléter notre évaluation des capacités de la nouvelle version de LMDz mise en place (section 5.5). Les estimations des sources et puits de méthane pour la période 2006-2012 à partir de différentes versions du système inverse, basées sur différentes représentation du transport atmosphérique par LMDz, ont alors été mises en oeuvre (chapitre 6). Ces simulations inverses ont permis de répondre à la question scientifique principale de la thèse sur la variabilité interannuelle (section 6.5) et les tendances (section 6.6) des sources et puits de méthane pour les années récentes (période 2006-2012). Finalement, on clôt ce mémoire (chapitre 7) par un résumé des résultats principaux obtenus au cours de cette thèse, accompagné d'une discussion générale et de suggestions quant à l'extension des présents travaux dans de futurs axes de recherche.

Le méthane dans le système climatique

LES DIFFÉRENTES caractéristiques physico-chimiques du méthane et l'impact de ce gaz sur le système climatique terrestre sont présentés dans ce chapitre.

Cet hydrocarbure, incolore et inodore, appartenant à la famille des alcanes, est composé d'un atome de carbone et de quatre atomes d'hydrogène (CH_4). Présent à l'état naturel sur Terre, le méthane se rencontre sous forme gazeuse dans les conditions de température et de pression de l'atmosphère terrestre.

Ce chapitre décrit, dans une première partie (section 2.1), en quoi le méthane est un élément fondamental de l'atmosphère terrestre. La section 2.2 présente l'état de l'art des connaissances sur le cycle du méthane dans le système terre-océan-atmosphère. Une troisième partie (section 2.3) est consacrée à la présentation des variations des concentrations atmosphériques de méthane depuis 800 000 ans jusqu'à aujourd'hui. Cette section expose aussi un large éventail des différentes études scientifiques alimentant le débat actuel qui porte sur la contribution respective des différentes catégories de sources et puits pour expliquer les variations des concentrations atmosphériques de méthane depuis le début de leur mesure directe dans l'atmosphère il y a 30 ans.

2.1 Le méthane...

En 1776, lorsque Alessandro Volta découvrit le "gaz des marais" en capturant des bulles remontant à la surface d'une zone marécageuse du lac Majeur en Italie, il ne s'attendait certainement pas à ce que deux siècles plus tard le méthane soit au centre des recherches scientifiques sur la compréhension du climat de notre planète. En effet, il est clair aujourd'hui que le méthane influe directement et indirectement sur le climat de la Terre. « Directement » puisque les caractéristiques intrinsèques de la molécule de méthane en font un gaz à effet de serre puissant. « Indirectement » puisque la réactivité chimique du méthane dans l'atmosphère impacte divers composés chimiques (ozone troposphérique et vapeur d'eau stratosphérique notamment) qui jouent également un rôle direct sur le climat.

2.1.1 ...un gaz à effet de serre puissant

L'effet du méthane sur le changement climatique vient, en premier lieu, de la capacité de la molécule de méthane à absorber le rayonnement infrarouge émis par le système terrestre : le méthane est un gaz à effet de serre (GES). La partie haute de la

figure 2.1 montre en effet qu'une grande partie du rayonnement infrarouge émis par la surface est absorbée par les GES (vapeur d'eau, dioxyde de carbone, méthane, dioxyde d'azote, ozone et les halocarbones). Au contraire, l'atmosphère est quasiment totalement transparente au rayonnement visible.

Néanmoins, la capacité d'absorption par les GES dépend largement de la longueur d'onde, comme le montrent les spectres d'absorption dans la partie basse de la figure 2.1. Dans le domaine infrarouge, la vapeur d'eau est le GES dont le spectre d'absorption est le plus dense. De plus, la concentration atmosphérique de la vapeur d'eau est l'une des plus élevées, faisant de ce gaz le principal contributeur à l'effet de serre naturel sur Terre (50-67%, Schmidt et al., 2010). Le méthane, quant à lui, absorbe fortement le rayonnement infra-rouge dans deux zones du spectre autour de 3 et 8 μm .

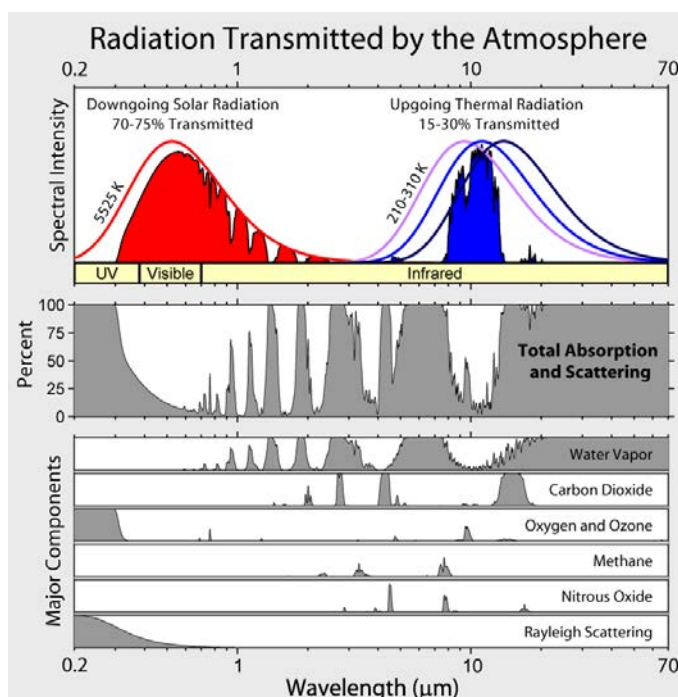


FIGURE 2.1: Rayonnement solaire incident (en rouge, en haut à gauche) et rayonnement terrestre émis (en bleu, en haut à droite) en fonction de la longueur d'onde. Bandes d'absorption des principaux gaz à effet de serre (en bas) et de toute l'atmosphère (au milieu). (Schéma repris du site de Robert A. Rohde : www.globalwarmingart.com)

Pour comparer l'impact des différents gaz à effet de serre anthropiques sur le bilan radiatif de la planète, le concept de forçage radiatif est régulièrement utilisé. Selon la définition proposée dans le 5e rapport du GIEC, le forçage radiatif d'un gaz à effet de serre quantifie le changement net dans l'équilibre énergétique du système Terre, relativement à l'année 1750 (période pré-industrielle), causé par une modification de la concentration de ce gaz à effet de serre. Il est généralement exprimé en Watt par unité de surface. Un forçage radiatif positif ou négatif signifie respectivement que l'atmosphère se réchauffe ou se refroidit. La figure 2.2 montre la contribution des émissions des différents gaz à effet de serre (et d'autres composés ou perturbations) au forçage radiatif total pour l'année 2011 d'après le dernier rapport du GIEC. Il est alors montré que les émissions de méthane ont conduit à un forçage radiatif qui est estimé à $0.97 \pm 0.17 \text{ W.m}^{-2}$ en 2011 relativement à 1750. Cependant, la seule augmentation des concentrations de méthane liée aux émissions de méthane dans l'atmosphère

n'est pas la seule contribution au forçage radiatif puisque l'émission d'une quantité de méthane impacte également les concentrations d'ozone et de vapeur d'eau stratosphérique (section 2.1.2), qui sont également deux gaz à effet de serre puissants. Ainsi, cette perturbation des concentrations d'ozone et de vapeur d'eau stratosphérique par l'émission de méthane participe également à l'augmentation du forçage radiatif. Finalement, la perturbation apportée par les émissions de méthane depuis 1750 sur le bilan radiatif de la Terre contribue fortement à la perturbation anthropique totale estimée à 2.3 [1.1 ; 3.3] W.m^{-2} . Le reste de la perturbation anthropique étant essentiellement attribué au dioxyde de carbone (1.68 [1.33 ; 2.03] W.m^{-2}) et aux aérosols (interaction aérosol-rayonnement : -0.27 [-0.77 ; 0.23] W.m^{-2} ; interaction aérosol-nuage : -0.55 [-1.33 ; -0.06] W.m^{-2}).

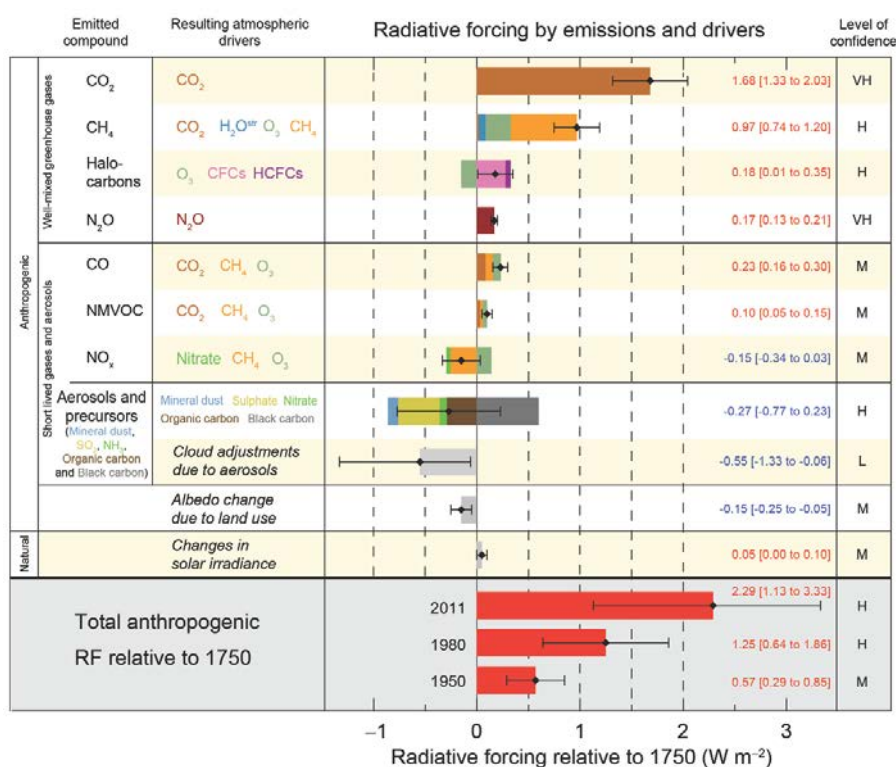


FIGURE 2.2: Forçage radiatif des principaux forçages anthropiques (gaz à effet de serre, aérosols, gaz à courte durée de vie) et naturels (rayonnement solaire) agissant sur le climat en 2011 relativement à 1750. Figure issue de [IPCC \(2013 : Summary for Policymakers\)](#).

Il est également intéressant de remarquer que le forçage radiatif lié aux émissions de CO₂ (1.68 [1.33 ; 2.03] W.m^{-2}) sur le bilan radiatif du système Terre est moins de 2 fois supérieur à celui du méthane. Cela peut paraître surprenant lorsqu'on sait que la concentration moyenne de CO₂ dans l'atmosphère est très supérieure à celle du CH₄. Par exemple, au cours du mois d'avril 2014, la concentration de CO₂ à Mauna Loa (Hawaï, USA) a dépassé 400 ppm alors que celle du méthane n'avoisinait « que » 1855 ppb (~ 1.86 ppm), soit une concentration de méthane environ 215 fois moins élevée que celle de CO₂ (données mesurées par le réseau NOAA/ESRL ; <http://www.esrl.noaa.gov/gmd/ccgg/trends/>). Cependant, l'efficacité de la molécule de méthane à absorber le rayonnement infra-rouge est bien supérieure à celle du di-

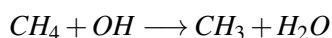
oxyde de carbone.

On utilise généralement le potentiel de réchauffement global (PRG ou GWP pour Global Warming Potential) pour caractériser la capacité d'un gaz à effet de serre à contribuer à une perturbation de l'équilibre radiatif. Cette notion, introduite par [Houghton and Jenkins \(1990\)](#), prend en compte à la fois la capacité de la molécule à absorber le rayonnement infrarouge et la durée de vie de la molécule dans l'atmosphère. Le PRG d'un gaz donné équivaut à l'intégration temporelle du forçage radiatif relatif à l'émission d'une masse donnée de ce gaz sur le forçage radiatif relatif à la même masse de CO₂. Dans le cas du méthane, le PRG est de 28 pour un horizon temporel de 100 ans, ce qui signifie qu'une masse de méthane émise aujourd'hui aura 28 fois plus d'impact sur le réchauffement global au cours d'une période de 100 ans que la même masse de CO₂. Sur un horizon temporel de 20 ans, le PRG du méthane est de 84. En effet, le temps de vie du méthane dans l'atmosphère étant d'environ 10 ans ([Voulgarakis et al. \(2013\)](#) ; voir section [2.1.2](#)), il est clair que l'effet du méthane est plus important à un horizon temporel de 20 ans plutôt qu'à 100 ans.

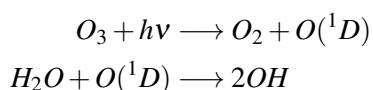
2.1.2 ...un acteur de la chimie atmosphérique

Le méthane est également un élément clé de la chimie atmosphérique. En effet, il participe à plusieurs réactions chimiques dans l'atmosphère qui impactent directement la concentration des gaz à effet de serre et de divers polluants.

Dans la troposphère, le méthane subit une oxydation par le principal oxydant de l'atmosphère : le radical hydroxyle, OH. La réaction d'oxydation du méthane par OH produit une molécule d'eau et un radical méthyle selon la formule :



Le radical hydroxyle, OH, provient de la photodissociation de l'ozone, O₃, par le rayonnement ultra-violet suivant les réactions chimiques suivantes :



[Levy \(1971\)](#) a été l'un des premiers à montrer l'importance de OH sur la capacité oxydante de l'atmosphère. Cependant, dans sa publication de 1971, l'ensemble des interactions entre les différentes espèces chimiques n'étaient pas toutes établies. En effet, [Levy \(1971\)](#) explique la régénération de OH grâce au seul transport depuis la stratosphère de O₃. Cependant, ce seul mécanisme n'est pas suffisant pour expliquer les concentrations de méthane (ou de monoxyde de carbone) dans l'atmosphère. Il est apparu que la concentration atmosphérique des oxydes d'azote, les NO_x, jouaient un rôle prépondérant dans la formation de l'ozone troposphérique, en favorisant, sous certaines conditions, la production de OH. Aujourd'hui, on sait que la chaîne d'oxydation du méthane met en jeu diverses réactions chimiques selon la compétition entre les concentrations des oxydes d'azote (NO_x) et des oxydes d'hydrogène (HO_x). Plaçons-nous dans deux cas extrêmes : un cas où les concentrations de NO_x sont importantes et un deuxième cas où au contraire l'atmosphère est fortement appauvrie en NO_x.

Dans un environnement où les concentrations de NO_x sont importantes, l'oxydation d'une molécule de méthane peut mener à la formation d'O₃ avec une possible régénération des radicaux OH, et un renforcement de la capacité oxydante de l'atmosphère. L'ozone (O₃) est un puissant photo-oxydant qui a des impacts néfastes sur la végétation ([Ashmore, 2005](#)) et la qualité de l'air ([Vautard et al., 2005](#)). Il est également un puissant gaz à effet de serre (PRG d'environ 65 à un horizon temporel de 20 ans). Ainsi, le

méthane participant à la production d'O₃ joue un rôle non négligeable sur la pollution photochimique et l'équilibre radiatif de l'atmosphère.

Au contraire, dans un environnement où les concentrations en NO_x sont faibles, la réaction d'oxydation du méthane peut entraîner la consommation de molécules d'ozone et de radicaux hydroxyles, affaiblissant alors la capacité oxydante de l'atmosphère.

De manière générale, la concentration atmosphérique de CH₄ est donc fortement dépendante de la concentration de OH ([Montzka et al., 2011](#); [Isaksen et al., 2011](#)). Par conséquent, une meilleure compréhension du radical OH mène automatiquement à une meilleure compréhension du cycle du méthane. Cependant, il existe encore beaucoup d'incertitudes sur la distribution spatiale et temporelle de OH à l'échelle du globe. On détaille les incertitudes qui subsistent sur la perte chimique de méthane par OH dans la section [2.4](#).

Dans la stratosphère, les réactions chimiques impliquant la molécule de méthane jouent essentiellement un rôle sur la formation de la vapeur d'eau dans cette partie très sèche de l'atmosphère. En effet, la réaction d'oxydation du méthane par OH produit une molécule d'eau. La vapeur d'eau étant le plus puissant gaz à effet de serre présent dans l'atmosphère, la création de vapeur d'eau augmente indirectement l'impact du méthane sur l'effet de serre comme on l'a vu dans la section [2.1.1](#). Un enrichissement de la stratosphère en vapeur d'eau mène aussi à une destruction d'ozone. L'ozone étant également un gaz à effet de serre, ce processus a un effet opposé. Cependant, la vapeur d'eau est un gaz à effet de serre beaucoup plus puissant que l'ozone, ce qui globalement mène à une rétroaction positive sur le forçage radiatif ([Shindell, 2001](#)).

2.2 Le cycle du méthane

La connaissance du cycle du méthane est essentielle pour la compréhension du cycle du carbone et plus largement pour une meilleure connaissance des forçages du changement climatique actuel et futur. Les échanges de méthane entre les différents réservoirs (océan, végétation, atmosphère et sols) de la Terre constituent le cycle du méthane. Ici, on s'intéresse principalement aux échanges avec l'atmosphère. Une représentation schématique de ces échanges est proposée sur la figure [2.3](#). Trois réservoirs (les réserves de gaz naturel, d'hydrates marins et d'hydrates du pergélisol) stockant du méthane sont également représentés.

Ainsi, on présente dans la section [2.2.1](#) l'ensemble des processus sources contribuant à une émission de méthane vers l'atmosphère, tandis que la section [2.2.3](#) expose les principaux mécanismes participant au puits de méthane dans l'atmosphère.

2.2.1 Les sources du méthane atmosphérique

Le méthane est émis à la surface de la Terre par différents processus qui peuvent être regroupés en trois types d'émissions principales : les émissions biogéniques, thermogéniques ou pyrogéniques.

Les émissions biogéniques sont le résultat de réactions de fermentation successives et de méthanogenèse par des micro-organismes en conditions anaérobies. On retrouve dans cette catégorie les émissions par les zones humides (marécages, rizières, tourbières, etc.), les eaux douces (lacs, rivières, réservoirs), les termites, les animaux sauvages, les décharges, les eaux usées et les ruminants. Les émissions thermogéniques proviennent de la lente dégradation sur des temps géologiques de la matière organique par l'action combinée de la température et de la pression. Les émissions par les volcans,

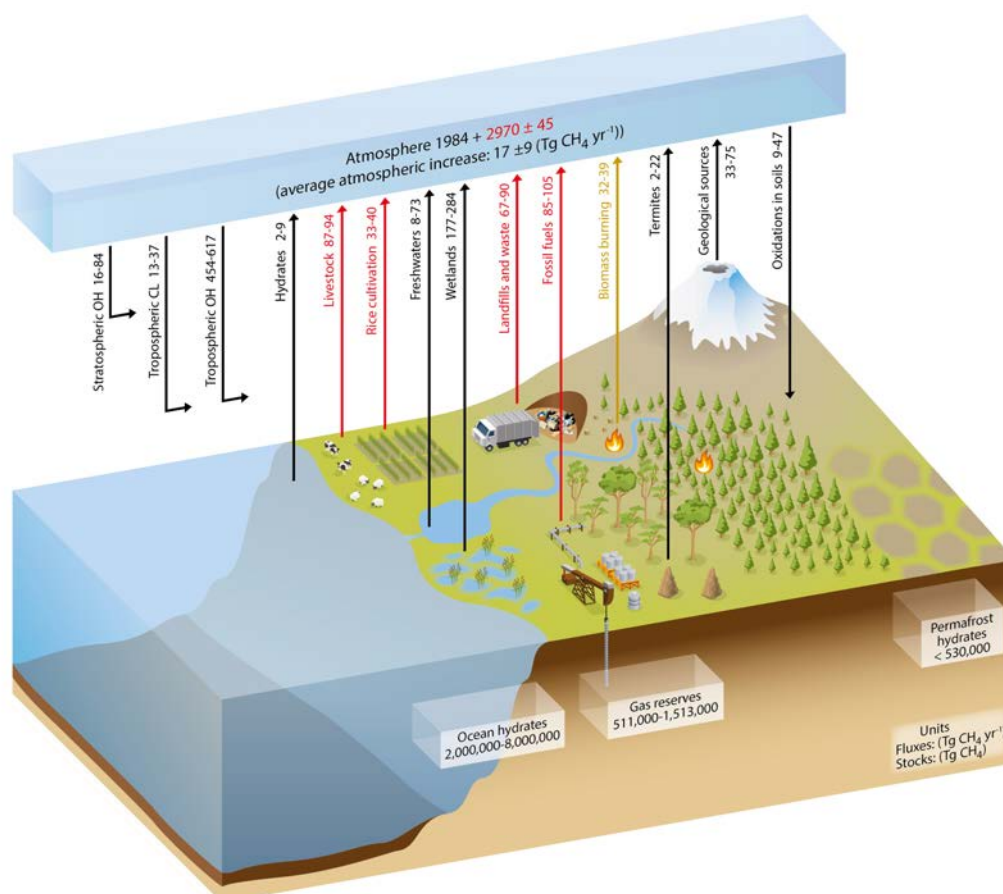


FIGURE 2.3: Représentation schématique du cycle du méthane. Les chiffres représentent les flux annuels (en $\text{TgCH}_4 \cdot \text{an}^{-1}$) moyennés sur la période 2000-2009 et les stocks de trois réservoirs géologiques (en TgCH_4). Dans chaque cas, on donne la valeur maximale et minimale des différentes estimations des flux et des stocks. Figure issue de [Ciais et al. \(2013\)](#).

les hydrates de méthane, les fuites de méthane lors de l'extraction, du transport et de la distribution du gaz naturel ou de l'exploitation des mines de charbon ou des gisements de pétrole ont une origine thermogénique. Les émissions pyrogéniques résultent de la combustion incomplète de la matière organique, comme lors de feux de biomasse ou de combustibles fossiles comme les biofuels domestiques. On considère que 64 à 76% des émissions actuelles de méthane sont d'origine biogéniques, 19 à 30% d'origine thermogéniques et 4 à 6% d'origine pyrogéniques ([Neef et al., 2010](#)). Cette classification reflète aussi des fractionnements isotopiques différents associés aux processus d'émissions de $\delta^{13}\text{C}_{\text{CH}_4}$ et de $\delta\text{D}(\text{C}_{\text{CH}_4})$, les deux isotopes stables du méthane. On aborde l'apport des mesures isotopiques sur la compréhension du cycle du méthane dans la section 7.2.3. Une autre manière fréquente de caractériser les émissions de méthane est de les distinguer selon leur caractère anthropique ou naturel. Les flux d'origine naturelle ou anthropique sont respectivement représentés par des flèches noires ou rouges sur la figure 2.3. Ainsi, on regroupe essentiellement les émissions des zones humides, des termites, des hydrates et des diverses sources géologiques dans les émissions naturelles. Les émissions anthropiques regroupent les émissions liées à l'agriculture, aux traitements des déchets, aux feux de biomasse et à l'extraction, au transport et

à l'utilisation des combustibles fossiles. La flèche marron relative aux émissions par les feux de la biomasse peut faire référence à la fois à des émissions anthropiques et naturelles. On estime aujourd'hui que 50 à 65% des émissions de méthane sont d'origine anthropiques. En effet, l'étude de [Kirschke et al. \(2013\)](#), dont les chiffres exposés sur la figure 2.3 sont issus, compile les estimations obtenues grâce à un ensemble d'approches montantes et/ou descendantes (voir section 1.2) pour la décade allant de 2000 à 2009. Ainsi, ils estiment les sources d'origine naturelle à 218 [179-273] $\text{TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ et à 335 [273-409] $\text{TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ les sources d'origine anthropique. Du côté des sources naturelles, les émissions par les zones humides sont les plus fortes (entre 177 et 284 $\text{TgCH}_4.\text{an}^{-1}$). C'est la source individuelle de méthane la plus importante. De plus, les sources géologiques, les termites, les hydrates et les émissions par les eaux douces contribuent respectivement à 33-75, 2-22, 2-9 et 8-73 $\text{TgCH}_4.\text{an}^{-1}$. Du côté des émissions anthropiques, les émissions dues aux combustibles fossiles, aux traitements des déchets, à la culture du riz et aux élevage de bétail contribuent respectivement à 85-105, 67-90, 33-40 et 87-94 $\text{TgCH}_4.\text{an}^{-1}$. Finalement, la somme des sources et des puits à l'échelle mondiale est respectivement estimée à 548 [526-569] et 540 [514-560] $\text{TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ pour l'approche descendante et montante.

Le nombre important de sources différentes, ainsi que les grandes incertitudes associées, apparaît clairement sur la figure 2.3. Ces deux caractéristiques limitent aujourd'hui notre compréhension du cycle du méthane. En effet, attribuer à un type d'émission spécifique une anomalie est particulièrement compliqué lorsque de nombreuses types d'émissions sont potentiellement responsables de cette anomalie. De plus, les émissions naturelles de méthane, contribuant fortement aux émissions totales planétaires, sont particulièrement incertaines et ceci constitue un frein dans notre capacité à comprendre le bilan global du méthane et son évolution. On synthétise dans la section 2.4 les principales incertitudes demeurant dans le cycle du méthane.

2.2.2 Quelques sources du méthane atmosphérique en questions

On présente ici un résumé de l'état des connaissances sur des sources potentielles du méthane atmosphérique qui font débat dans la communauté scientifique : les flux de méthane provenant de la fonte du pergélisol, de l'exploitation des gaz non conventionnels (gaz de schiste, en particulier), des hydrates marins, des eaux douces et de la végétation.

Le pergélisol

Le pergélisol est, selon la définition exposée dans le 5^e rapport du GIEC, une couche de la surface terrestre dont la température reste inférieure ou égale à zéro pendant deux années ou plus. On retrouve le pergélisol dans les régions arctiques ou subarctiques, les régions de haute altitude et dans les régions antarctiques où le sol n'est pas recouvert de glace. La quantité de carbone stockée dans le pergélisol bien qu'incertaine est probablement très importante. De récentes études quantifient ce stock autour de 1700 pétagrammes de carbone ([Tarnocai et al., 2009](#)). L'émission d'une quantité partielle de ce stock de carbone dans l'atmosphère augmenterait encore les concentrations atmosphériques de CO_2 et de CH_4 , et entraînerait une rétroaction positive en accentuant les effets du changement climatique. De plus, il a été montré que ces émissions dans les régions arctiques pourraient entraîner de nombreux impacts négatifs sur l'économie mondiale ([Whiteman et al., 2013](#)).

D'après [Vaughan et al. \(2013\)](#), il n'y a pas de doute que le réchauffement de la surface

terrestre impliquera une diminution de l'étendue spatiale du pergélisol. En effet, à la fin du 21^e siècle, on s'attend à ce que l'étendue spatiale du pergélisol proche de la surface (jusqu'à 3.5 mètres de profondeur) soit réduite entre 37% et 81% de la surface actuelle. Cependant, de nombreuses incertitudes sur les émissions futures liées à la fonte du pergélisol demeurent. Tout d'abord, une grande incertitude repose sur la quantité réelle de carbone stockée dans le pergélisol. Bien que [Tarnocai et al. \(2009\)](#) ou [Schuur et al. \(2008\)](#) évoquent 1700 PgC, [McGuire et al. \(2010\)](#) affirment que l'incertitude sur cette estimation pourrait être de l'ordre de plusieurs centaines de Pg. De plus, il existe de grandes incertitudes sur la vitesse à laquelle l'émission de carbone par le pergélisol se produira. Une étude ([Fan et al., 2008](#)) évoque que cette émission de carbone pourrait avoir lieu, petit à petit, durant plusieurs dizaines d'années après la fonte du pergélisol. Une dernière incertitude porte sur la forme que prendra le carbone émis. En effet, il est difficile d'estimer la quantité de carbone qui sera émis sous forme de CO₂ et/ou de CH₄.

Ainsi, bien qu'il soit maintenant admis qu'un réchauffement planétaire entraînera des émissions de carbone par le pergélisol, de larges incertitudes existent sur ces émissions potentielles de méthane. Il est toutefois important d'avoir conscience que les inversions, contraintes par des mesures atmosphériques, ne détectent pas (ou très peu) d'émissions de méthane liées à la fonte du pergélisol pour les années récentes, comme en atteste l'absence de flèches relatives aux émissions de méthane par le pergélisol sur la figure 2.3.

Le gaz de schiste

Le gaz de schiste fait référence au gaz naturel enfoui, à très grande profondeur, dans des roches compactes et imperméables. Il a figuré au cœur de l'actualité lorsque les Etats-Unis ont débuté l'exploitation de ce gaz non-conventionnel au début des années 2000. Ils sont alors devenus le plus grand producteur de gaz de la planète en 2013 (selon les chiffres de l'EIA (Energy Information Administration)). Outre les problèmes environnementaux liés à l'utilisation de la technique de fracture hydraulique, une question se pose sur la quantité de méthane émis lors de l'extraction de ce gaz au niveau des puits de forage. [Karion et al. \(2013\)](#) ont quantifié, grâce à des mesures directes de CH₄ par avion, que les fuites de méthane liées à l'exploitation du gaz de schiste au niveau d'un forage situé dans l'Utah (USA) pouvaient atteindre 6 à 12% de la production de gaz naturel du puits. Cette estimation est en accord avec l'étude de [Howarth et al. \(2011\)](#) qui ont quantifié qu'une quantité de 3.6 à 7.9% du méthane extrait au niveau d'un puits de forage était directement émise dans l'atmosphère. Ils estiment que les fuites de méthane sont au moins 30% plus importantes que lors de l'extraction de gaz naturel utilisant des techniques conventionnelles. Cependant, d'autres études mentionnent des taux de fuite beaucoup plus bas ([Cathles III et al., 2012](#)). De nombreuses campagnes de mesures ont lieu actuellement et devraient permettre de mieux quantifier les taux de fuite de méthane dans l'atmosphère lors de l'extraction du gaz de schiste.

Les hydrates marins

Les hydrates de méthane (ou clathrates) sont des composés cristallins où une molécule de méthane est piégée par une fine « cage » formée par des molécules d'eau à l'état solide. Les hydrates de méthane sont stables dans des conditions de températures basses et de pressions élevées, que l'on rencontre en grande partie dans les sédiments marins des plateaux continentaux à des profondeurs proches de 500 mètres. De la même manière que pour le pergélisol, les stocks de méthane sous forme d'hydrates sont très incertains. De plus, il existe de grandes méconnaissances sur le transport du méthane depuis le fond de l'océan jusqu'à la surface et vers l'atmosphère. Cependant, il est clair que des perturbations de la température ou de la pression causées par des

changements climatiques pourraient entraîner, à l'échelle centennale probablement, une déstabilisation de ces clathrates et entraîner un flux de méthane vers l'atmosphère.

Aujourd'hui, il y a encore trop peu de données qui montrent des émissions de méthane dues aux hydrates marins à l'échelle globale. Les inversions atmosphériques ne détectent quasiment pas d'émissions provenant des hydrates marins, tandis que les approches montantes ont fourni une estimation des émissions de méthane par les hydrates dans une fourchette allant de 2 à 9 TgCH₄.an⁻¹ (Kirschke et al., 2013).

Les eaux douces :

Dans les réservoirs, rivières et lacs d'eaux douces, l'émission de méthane provient de la dégradation de la matière organique au fond du lac/réservoir. Cependant, l'estimation des émissions de méthane par les eaux douces est difficile puisqu'il existe au moins quatre types de flux qui mènent à une émission de méthane vers l'atmosphère : un flux diffusif (diffusion à l'interface eau/atmosphère), un flux d'ébullition (bulles de méthane remontant depuis le fond du lac et/ou réservoir), un flux de stockage (diffusion du stock de méthane, conservé au fond du lac, vers l'atmosphère lors d'éventuels retournements du lac) et un flux à travers la végétation aquatique. Une quantification des émissions de méthane par les eaux douces reposent alors sur une connaissance précise de ces différents flux. Jusqu'alors, Bastviken et al. (2004) ont établi que le flux d'ébullition contribuait entre 40 à 60% au flux total, bien que ce flux soit extrêmement variable et plus difficile à mesurer que les trois autres types de flux. A l'échelle planétaire, Bastviken et al. (2004) ont estimé les émissions par les eaux douces entre 8 et 48 TgCH₄.an⁻¹ (entre 6 et 16% des émissions planétaires totales). Plus récemment, Bastviken et al. (2011), en utilisant de nouvelles données, ont largement revu à la hausse leur estimation en donnant le chiffre de 103.3 TgCH₄.an⁻¹. Les larges différences qui existent entre les différentes estimations rendent nécessaire d'autres études portant sur les émissions de méthane par les eaux douces pour affiner la connaissance et l'estimation de cette source potentielle de méthane atmosphérique.

La végétation

En 2006, Keppler et al. (2006) ont conclu que les plantes pouvaient être une source de méthane non négligeable dans des conditions aérobiques. Ils ont estimé cette source entre 62 et 236 TgCH₄.an⁻¹, ce qui contribuerait fortement aux émissions mondiales de méthane. Ce résultat est cohérent avec l'étude de Frankenberg et al. (2005) qui présente les premières cartes mondiales de colonnes totales de méthane reconstruites à partir des mesures de SCIAMACHY. En effet, ces cartes montrent un large excédent de méthane au niveau des forêts tropicales, qui toutefois n'est pas en accord avec l'ordre de grandeur des émissions de méthane par les plantes estimées par Keppler et al. (2006). De plus, des améliorations portant sur l'analyse des mesures par satellites ont ensuite mené à une forte diminution des colonnes totales de méthane observée dans les Tropiques (Frankenberg et al., 2008). Ainsi, bien qu'il soit maintenant établi que la végétation puisse émettre du méthane dans des conditions aérobiques, des mesures supplémentaires des flux de méthane par les plantes (Dueck et al., 2007; Nisbet et al., 2009; Vigano et al., 2008; Bloom et al., 2010) et des analyses des concentrations atmosphériques (Houweling et al., 2006) n'ont pas confirmé que la végétation, dans des conditions aérobiques, était un contributeur important aux émissions de méthane planétaires.

2.2.3 Les puits du méthane atmosphérique

Le puits principal du méthane atmosphérique est l'oxydation par le radical hydroxyle (OH). Cette réaction a lieu principalement dans la troposphère et est respon-

sable de 90% du puits total de méthane. Le détail de la réaction chimique entre CH_4 et OH a été présenté à la section 2.1.2.

Le reste du puits de méthane se répartit entre l'oxydation dans les couches supérieures des sols aérobies par des bactéries méthanotrophes (4%) (Curry, 2007; Zhuang et al., 2004), les réactions avec les radicaux de chlore et les radicaux oxygénés dans la stratosphère (3%) (Shallcross and Harrison, 2007; Neef et al., 2010), et les réactions avec les radicaux de chlore dans la couche limite marine (3%) (Allan et al., 2007).

Considérant les différents puits influençant la concentration atmosphérique de méthane, le temps de vie du méthane dans toute l'atmosphère a été estimé à 12.4 ± 1.4 an dans le 5^e rapport du GIEC. Dans la troposphère seulement, le temps de vie est plus court. L'intercomparaison de modèles de chimie atmosphérique de Voulgarakis et al. (2013) a estimé le temps de vie du méthane troposphérique à 9.8 ± 1.6 an, relativement à un puits par OH seulement.

2.3 Les variations des concentrations atmosphériques de méthane...

2.3.1 ...depuis 800 000 ans

La mesure des bulles d'air piégées dans les carottes de glace a permis de reconstituer l'évolution de la concentration atmosphérique de méthane depuis 800 000 ans (Louergue et al., 2008). Le rapport de mélange du méthane¹ a oscillé entre 350 et 800 ppb au cours des différentes périodes glaciaires et inter-glaciaires (figure 2.4). Au cours du dernier maximum glaciaire, cette concentration était de 325 ppb et a atteint 725 ppb durant la période pré-industrielle de l'Holocène (Chappellaz et al., 1993, 1997).

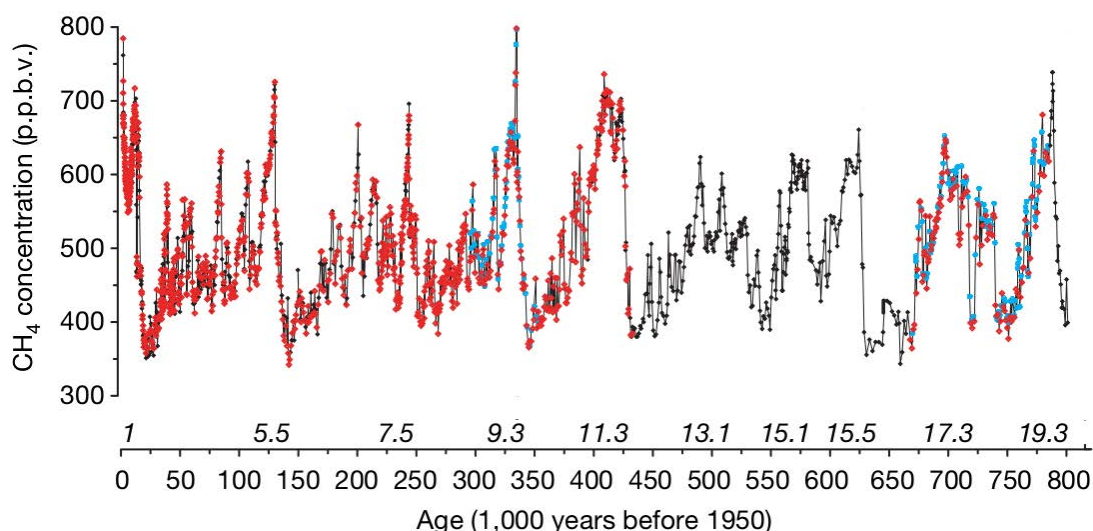


FIGURE 2.4: Série temporelle de la concentration de méthane (en ppb) reconstruite à partir de la carotte de glace de EPICA/Dome C (Antarctique) d'après Louergue et al. (2008).

1. Le rapport de mélange d'un gaz est le nombre de mole de ce gaz par mole d'air. Par abus de langage et pour simplifier le texte, on utilisera par la suite le terme de « concentration » de méthane (qui est au sens strict la masse de méthane par unité de volume) au lieu du rapport de mélange de méthane.

Chappellaz et al. (1993) expliquent l'augmentation depuis le dernier maximum glaciaire par l'augmentation des émissions de méthane par les zones humides. Plus généralement, Fischer et al. (2008) montrent que les émissions par les zones humides tropicales et boréales, tout comme l'augmentation du temps de vie du méthane dû à une réduction de la capacité oxydante de l'atmosphère, sont probablement les principales raisons de l'augmentation des concentrations de méthane durant les périodes inter-glaciaires.

Depuis le début de l'ère industrielle, la concentration de méthane a augmenté de manière spectaculaire, en corrélation avec la forte augmentation des émissions anthropiques, pour passer de 750 ppb en 1750 à 1645 ppb en 1984 quand les mesures directes de méthane ont débuté à certaines stations (Mauna Loa et Pôle Sud) du réseau NOAA/ESRL. Cela représente une multiplication par 2.2 des concentrations de méthane en 230 ans.

2.3.2 ...pour les années récentes

Au cours des trois dernières décennies, la concentration de méthane dans l'atmosphère a continué d'augmenter pour atteindre 1830 ppb à la fin de l'année 2012 (World Data Centre for Greenhouse Gases (WDCGG) ; <http://ds.data.jma.go.jp/gmd/wdchg/>). Cependant, l'augmentation ne s'est pas faite de manière régulière avec de grandes variations des concentrations de méthane d'une année sur l'autre et des changements de tendances décennales. On analyse ces variations à partir des séries temporelles de la concentration moyenne globale de méthane (traits pointillés sur la figure 2.5) et du taux de croissance du méthane atmosphérique (traits pleins sur la figure 2.5).

De manière générale, la figure 2.5 montre que le taux de croissance est fortement positif ($> 10 \text{ ppb.an}^{-1}$) dans les années 80 tout en décroissant régulièrement (mais en restant fortement positif!). En réponse, la concentration atmosphérique moyenne globale du méthane a augmenté rapidement et régulièrement pour passer de ~ 1625 ppb en 1983 à ~ 1714 ppb en 1992 (Simpson et al., 2002; Dlugokencky et al., 1994). Au cours de la décennie 90, le taux de croissance a continué à diminuer. En effet, entre 1992 et 1999, la concentration de méthane n'a augmenté que de 40 ppb (environ 5 ppb par an). On assiste alors à une stabilisation du taux de croissance du méthane atmosphérique entre 1999 et 2006. La figure 2.5 montre que la concentration moyenne globale de méthane s'est stabilisée à une concentration légèrement supérieure à 1750 ppb durant cette période. Dlugokencky et al. (2003) ont notamment mesuré la moyenne globale de méthane oscillant autour de 1751 ppb entre 1999 et 2002. En 2007, le taux de croissance est soudainement reparti à la hausse (environ 6 ppb.an^{-1} ; (Rigby et al., 2008)). Dlugokencky et al. (2009) ont également estimé une augmentation de la concentration atmosphérique de méthane de 8.3 ± 0.6 ppb au cours de l'année 2007. Cette augmentation de la concentration de méthane s'est maintenue au cours des années suivantes. Début 2014, la concentration moyenne globale de méthane atteignait 1833 ppb (selon les données du WDCGG).

Au delà de la variabilité décennale du taux de croissance du méthane, on remarque également de fortes variabilités interannuelles (comme en 1991 ou 1998 sur le graphique de gauche de la figure 2.5) qui complexifient la compréhension de l'équilibre entre les sources et puits de méthane. Ces fortes variabilités interannuelles sont généralement associées à de fortes anomalies climatiques (éruptions volcaniques, phénomène El-Niño/La Niña). On détaille dans la section 2.3.3 les principales anomalies climatiques qui ont engendré des perturbations ponctuelles du taux de croissance du méthane.

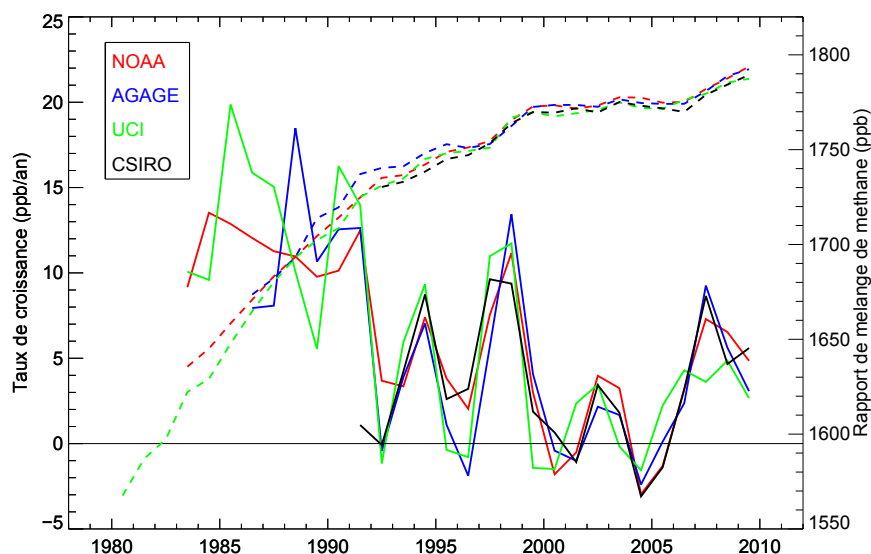


FIGURE 2.5: Evolution de la concentration atmosphérique moyenne globale de méthane (en ppb) durant la période 1983-2012 (traits pointillés faisant référence à l'axe des ordonnées de droite) et évolution du taux de croissance moyen de méthane dans l'atmosphère (en ppb.an^{-1}) durant la période 1983-2012 (traits pleins faisant référence à l'axe des ordonnées de gauche) pour 4 réseaux de stations de surface (NOAA (en rouge), AGAGE (en bleu), UCI (en vert) et CSIRO (en noir)). Figure adaptée de Kirschke et al. (2013).

2.3.3 Le débat actuel sur la contribution des différentes sources et puits au bilan total du méthane atmosphérique

Les concentrations atmosphériques de méthane reflètent l'équilibre (ou le déséquilibre) entre les différents sources et puits. Cependant, la diversité des sources et puits fait qu'il est très difficile de connaître précisément l'origine et l'intensité des variations des concentrations atmosphériques, aux échelles interannuelles et décennales. On présente alors, dans les sous-sections suivantes, les différentes études qui ont proposé des explications pour les différentes fluctuations du taux de croissance du méthane entre le milieu des années 1980 et la fin des années 2010 :

- diminution régulière du taux de croissance du méthane accompagnée de fortes fluctuations à la fin des années 80 et durant les années 90 (section 2.3.3.1)
- stabilisation des concentrations atmosphériques au cours du début des années 2000 (section 2.3.3.2)
- réaugmentation du taux de croissance depuis 2007 (section 2.3.3.3)

Les résultats des inversions menées dans le cadre de cette thèse contribuent également à ce débat scientifique (voir chapitre 6).

2.3.3.1 La diminution régulière et quelques fortes fluctuations du taux de croissance du méthane atmosphérique durant la fin des années 80 et le début des années 90

En moyenne, le taux de croissance du méthane atmosphérique a diminué au cours des années 90 avec des fluctuations plus ou moins fortes selon les années. Tout d'abord, plusieurs études ont conclu que la diminution des émissions anthropiques liées aux énergies fossiles était responsable de la diminution du taux de croissance de

méthane au cours des années 90. [Dlugokencky et al. \(1994\)](#) évoquent le ralentissement économique après l'effondrement du bloc soviétique pour expliquer le ralentissement du taux de croissance de méthane atmosphérique. [Bousquet et al. \(2006\)](#) ont également trouvé, à partir d'une optimisation des concentrations atmosphériques par modélisation inverse, une diminution des émissions anthropiques de l'hémisphère Nord dans les années 90. [Aydin et al. \(2011\)](#), à partir de mesures d'éthane au Groenland et en Antarctique et en considérant un rapport entre les émissions de méthane et d'éthane, ont également estimé qu'une diminution des émissions dues à la combustion des énergies fossiles était probablement à l'origine de la diminution du taux de croissance de méthane dans les années 90. [Simpson et al. \(2012\)](#) trouvent les mêmes conclusions, en spécifiant que les diminutions des fuites au niveau des puits d'extraction du gaz naturel expliqueraient la décroissance du taux de croissance de méthane.

Cependant, ces études sont en contradiction avec les conclusions de [Kai et al. \(2011\)](#) qui attribuent, à partir de mesures des isotopes du méthane, une diminution des émissions biogéniques (notamment une diminution des émissions au niveau des rizières liées à une augmentation de l'utilisation des engrais et une meilleure utilisation des techniques d'irrigation) plutôt qu'une diminution des émissions liées aux énergies fossiles pour expliquer la diminution du taux de croissance du méthane atmosphérique. Cependant, [Levin et al. \(2012\)](#) ont répondu à cette dernière étude en démontrant que la méthode adaptée par [Kai et al. \(2011\)](#) n'était pas robuste puisqu'ils n'utilisaient que trop peu de mesures d'isotopes de méthane pour pouvoir tirer des conclusions fiables. [Levin et al. \(2012\)](#) suggèrent alors que les émissions anthropiques fossiles et biogéniques ont été constantes sur la période 1988-2005.

Cette diminution régulière du taux de croissance du méthane atmosphérique est également accompagnée par de fortes fluctuations d'une année sur l'autre. Deux événements climatiques majeurs ont piloté les fortes variations du taux de croissance de méthane : l'éruption du Mont Pinatubo aux Philippines et le fort El Niño de 1997-1998. [Dlugokencky et al. \(1996\)](#) ont montré que l'éruption du 15 juin 1991 au Mont Pinatubo était à l'origine de l'augmentation rapide du taux de croissance en 1991 et pour le début de l'année 1992. En effet, l'émission d'environ 20 Méga-tonnes de SO_2 dans la basse stratosphère a fortement modifié le rayonnement ultra-violet permettant la photolyse de O_3 (et la formation de OH) dû à une absorption directe du rayonnement UV par SO_2 . De même, la dispersion du rayonnement par les aérosols sulfatés a également contribué à diminuer le rayonnement UV dans la troposphère. En conséquence, la concentration de OH a été diminuée et a provoqué une diminution du puits chimique de méthane. Le taux de croissance du méthane atmosphérique a donc subi une anomalie positive en 1991 en comparaison avec les autres années de la décennie 1990. Au contraire, le refroidissement de la basse troposphère ([Dutton and Christy, 1992](#)) résultant de l'éruption a, par la suite, entraîné une anomalie négative du taux de croissance puisque les émissions par les zones humides, largement sensibles aux variations de température, ont diminué ([Bousquet et al., 2006](#)).

Plus tard dans la décennie, les très fortes sécheresses provoquées par le très fort El Niño de 1997-1998 ont provoqué une augmentation des feux de biomasse dans les Tropiques et dans les régions boréales en Eurasie. En effet, [Simpson et al. \(2006\)](#) énoncent l'importance de la considération des feux de la biomasse pour expliquer les fluctuations interannuelles du taux de croissance de méthane. Selon leur étude, les feux en Indonésie en 1997 et en Russie en 1998 sous l'influence du El Niño ont contribué à l'augmentation et aux rapides variations du taux de croissance de méthane pour ces deux années.

2.3.3.2 La stabilisation des années 2000

Une stabilisation du taux de croissance de méthane dans l'atmosphère est mesurée à partir de 1999 malgré encore de nombreuses fluctuations interannuelles ([Simpson et al., 2006](#)).

[Dlugokencky et al. \(2003\)](#) a émis l'hypothèse que la décroissance graduelle du taux de croissance du méthane puis sa stabilisation pouvait ressembler à l'atteinte de l'état d'équilibre du méthane dans l'atmosphère, en supposant que le temps de vie du méthane était plus ou moins constant. Par conséquent, cette hypothèse suppose que les émissions sont plus ou moins constantes. Ceci est en accord avec les études de [Aydin et al. \(2011\)](#) et [Simpson et al. \(2012\)](#) qui considèrent que les émissions anthropiques, après la diminution des années 90, ont atteint un état stationnaire. Au contraire, [Bousquet et al. \(2006\)](#) évaluent que la stabilisation atmosphérique du méthane est engendrée par une compensation entre une diminution des émissions des zones humides et une augmentation des émissions anthropiques. Quant à [Simpson et al. \(2006\)](#), ils affirment que les feux de la biomasse peuvent expliquer certaines fluctuations importantes du taux de croissance comme cela a été déjà évoqué au cours des années 90. En effet, ils attribuent l'augmentation du taux de croissance en 2002 et 2003 aux feux en Russie durant l'été et l'automne de 2002 et 2003.

Les causes de cette phase de stagnation du taux de croissance atmosphérique sont encore largement débattues dans la communauté scientifique.

2.3.3.3 L'augmentation du taux de croissance du méthane atmosphérique depuis 2007

Après presque une décennie de stagnation du taux de croissance du méthane, une augmentation de la concentration atmosphérique de méthane a été mesurée depuis 2007.

[Rigby et al. \(2008\)](#) sont les premiers à montrer un nouveau départ à la hausse pour les concentrations de méthane, déjà mentionné comme probable par [Bousquet et al. \(2006\)](#). Cette augmentation est notamment mesurée dans les deux hémisphères, suggérant une contrainte globale à cette anomalie positive. [Rigby et al. \(2008\)](#) évoquent alors que la diminution de $4 \pm 14\%$ de la concentration de OH trouvée grâce à une inversion atmosphérique pourrait expliquer cette variation du taux de croissance. Cependant, ils admettent que cette estimation de la diminution des concentrations de OH n'est pas statistiquement significative.

Dès lors, plusieurs études montrent que l'augmentation des émissions de méthane depuis 2007 est liée à une augmentation des émissions par les zones humides. En effet, [Dlugokencky et al. \(2009, 2011\)](#) évoquent que les conditions climatiques extrêmes de 2007 dans certaines zones du globe sont propices à de fortes émissions de méthane. [Stroeve et al. \(2008\)](#) ont notamment enregistré une étendue basse de la glace gelée et [Lawrence et al. \(2008\)](#) ont évoqué un réchauffement très important en Arctique en 2007. Ainsi, [Dlugokencky et al. \(2011\)](#) affirment que les fortes anomalies positives de températures mesurées dans les latitudes élevées de l'hémisphère nord en 2007 pourraient être à l'origine de fortes émissions de méthane puisque ce sont des régions contenant une grande proportion de zones humides. De plus, [Dlugokencky et al. \(2009\)](#) a également évoqué l'épisode La Niña en 2008 qui a entraîné des précipitations supérieures à la moyenne dans les Tropiques ([Schneider, 2008](#)) et qui, par conséquent, pourraient être à l'origine de fortes émissions de méthane par les zones humides de ces régions-là. Dans le même sens, [Bousquet et al. \(2011\)](#) attribuent, grâce à diverses inversions atmosphériques, l'anomalie positive des émissions de méthane en 2007 aux émissions par les zones humides des Tropiques. Ils trouvent que les émissions par les

zones humides des hautes latitudes ont également une contribution importante à cette anomalie globale.

Après la période 2007-2008, différentes études mentionnent une contribution importante des tropiques pour expliquer le taux de croissance du méthane de la dernière décennie (Pison et al., 2013; Bergamaschi et al., 2013; Houweling et al., 2014). Cependant, il reste une incertitude importante sur le cocktail de sources expliquant cette augmentation entre émissions par les zones humides et émissions anthropiques. Ainsi, Bergamaschi et al. (2013), à partir d'inversions atmosphériques, ont largement attribué l'augmentation du méthane atmosphérique entre 2007 et 2010 à une augmentation des émissions anthropiques, même s'ils reconnaissent une anomalie positive des émissions par les zones humides de l'Arctique en 2007.

2.4 Les incertitudes actuelles sur les sources et puits de méthane

Les sections précédentes ont mis en évidence qu'aucun consensus n'avait encore été trouvé pour expliquer les variations des concentrations de méthane dans l'atmosphère des dernières décennies. En effet, les incertitudes portant sur les émissions de méthane par certains processus peuvent être très importantes. La figure 2.6, issue de la publication de Kirschke et al. (2013), montre l'évolution des incertitudes liées à l'estimation des émissions par divers processus (zones humides, agriculture et déchets, feux de biomasse, énergies fossiles, puits chimique par OH, et d'autres sources) sous forme schématique pour les 3 dernières décennies.



FIGURE 2.6: Evolution des incertitudes sur les estimations des sources et puits de méthane par une approche montante (B-U) ou descendante (T-D). La taille des cercles représente la robustesse des estimés (nombre d'études publiées). La couleur des cercles représente la cohérence des études entre-elles (vert : bonne cohérence ; jaune : cohérence moyenne ; rouge : faible cohérence). Dans le cas où une seule étude est disponible, le cercle apparaît en gris. Figure issue de Kirschke et al. (2013).

La taille des cercles décrit la robustesse de la connaissance sur les émissions d'un processus en particulier. Cette robustesse est simplement calculée par le nombre de publications qui ont donné une estimation de la quantité de méthane émis par un

processus en particulier. On remarque que la robustesse a été très largement améliorée entre les années 2000 et les années 1980 pour tous les processus à l'origine de l'émission de méthane. Ceci est d'autant vrai pour les estimations utilisant l'approche « top-down » (T-D) puisque tous les processus détaillés sur la figure 2.6 comptent entre 4 et 6 publications estimant leurs émissions.

La cohérence entre les différentes publications scientifiques est représentée par la couleur du cercle. En rouge, plus de 66% de différences sont trouvées dans les estimations des émissions ce qui est synonyme d'une cohérence très faible entre les études. En jaune, la cohérence est moyenne puisque des différences allant de 33% à 66% sont trouvées. La cohérence est bonne lorsque le cercle est vert (les estimés diffèrent de moins de 33%). Pour la dernière décennie et ne considérant que l'approche descendante, l'accord entre les différentes études est bon pour l'estimation des émissions liées à l'agriculture et aux déchets et pour l'estimation du puits par OH. Pour l'approche montante (B-U), une bonne cohérence est trouvée entre les études pour l'estimation des émissions de méthane par les feux de la biomasse, l'agriculture et les déchets, et les énergies fossiles. Cependant, l'estimation des émissions par les zones humides qui contribuent pour une grande part aux émissions de méthane d'origine naturelle est encore très incertaine. En effet, le niveau de confiance est moyen à la fois pour l'approche montante et l'approche descendante. De plus, il est important de souligner qu'aucune catégorie de sources ou de puits n'obtient à la fois un degré de confiance élevé et un nombre de publications scientifiques (robustesse) élevé.

Finalement, il est légitime d'affirmer que les incertitudes associées aux estimations des différentes catégories de sources et de puits de méthane par des méthodes inverses ou par des approches montantes sont grandes et qu'il est, par conséquent, difficile de dresser aujourd'hui une connaissance précise du cycle du méthane et des fortes variabilités associées. Notamment, de part leur importance dans le bilan mondial de méthane, l'incertitude sur les émissions des zones humides ou inondées et la perte chimique par OH sont les deux éléments les plus limitants pour fermer le bilan de méthane.

Les zones humides ou inondées :

Les zones humides sont, par définition, des terres périodiquement inondées. On a vu dans la section 2.2.1 que les émissions de méthane liées à ces écosystèmes étaient d'origine biogéniques dues à la dégradation de la matière organique par des bactéries méthanogènes dans un environnement anoxique. Les grandes incertitudes sur les émissions de méthane par les zones humides reposent sur le fait qu'il est nécessaire de connaître à la fois la dynamique des étendues des zones humides et la densité des flux de méthane associés à ces écosystèmes. Cependant, les zones humides possèdent une grande variabilité dans leur régime hydrique, localisation et superficie. Récemment, [Melton et al. \(2013\)](#) ont conduit une intercomparaison de dix modèles simulant l'étendue des zones humides et l'émission de méthane associée à ces écosystèmes. Il est apparu clairement que les résultats des simulations de ces différents modèles étaient fortement en désaccord, aussi bien spatialement que temporellement, à la fois pour la quantité de méthane émis par les zones humides et par l'étendue de ces zones.

Malgré tout, il est certain que les émissions par les zones humides contribuent fortement aux émissions de méthane totales. De plus, il a également été montré qu'il existe une forte rétroaction positive entre les émissions de méthane par les zones humides et l'augmentation de la concentration atmosphérique de CO₂ ([Melton et al., 2013](#)), ce qui laisse à penser que la contribution des émissions de méthane par les zones humides pourraient encore être plus importante dans les décennies à venir.

Perte chimique par OH :

Les incertitudes qui persistent sur la connaissance de la perte chimique de méthane par le radical OH viennent, entre autres, de la difficulté à mesurer directement la concentration de OH. En effet, la durée de vie de OH dans l'atmosphère n'excédant pas quelques secondes, l'impact de mesures directes de OH reste très local et ne renseigne pas sur de plus grandes échelles spatiales (Montzka et al., 2011). Pour quantifier les niveaux du radical OH aux échelles régionales à planétaires, on utilise généralement soit des modèles climatiques de chimie atmosphérique soit des méthodes par proxy.

L'une des méthodes par proxy la plus utilisée est celle qui se sert des mesures de méthyl-chloroforme (CH_3CCl_3), qui réagit essentiellement avec le radical OH dans l'atmosphère, pour en déduire les concentrations de OH. Si on suppose les émissions de CH_3CCl_3 raisonnablement connues, on peut utiliser des mesures atmosphériques de ce chlorofluorocarbone (CFC) pour contraindre le niveau moyen et les variations du radical OH à grande échelle. Cette méthode a été largement utilisée pour étudier la variabilité des concentrations de OH dans l'atmosphère (Prinn, 2005; Krol et al., 2005; Montzka et al., 2011). On verra à la section 3.3 que suivant cette méthode, les concentrations de OH sont optimisées par les concentrations de CH_3CCl_3 dans le système inverse utilisé au cours de cette thèse.

Une autre méthode pour étudier les variations des concentrations du radical OH est d'utiliser des modèles climatiques de chimie qui simulent les différents processus physico-chimiques impliquant OH dans l'atmosphère. L'étude d'intercomparaison de modèles climatiques de chimie (Naik et al., 2013) a permis de mettre en évidence la très large diversité qui existe dans la communauté scientifique étudiant les changements dans la concentration du radical OH. Il existe notamment une grande diversité dans le signe et l'ordre de grandeur des tendances de OH entre les modèles. Ces différences entre modèles proviennent notamment des différences de représentation des processus physiques et chimiques dans les modèles de climat. Malgré les incertitudes, Naik et al. (2013) montrent que la concentration de OH est restée quasiment constante au cours des 150 dernières années, en dépit de larges variations régionales. Au cours de cette même période, le temps de vie du méthane troposphérique a légèrement diminué ($-2.0 \pm 8.8\%$), probablement lié à l'augmentation de la température troposphérique, pour atteindre aujourd'hui $9.7 \pm 1.5\%$ an (moyenne de l'ensemble des modèles de l'expérience ACCMIP; (Naik et al., 2013)). Pour la période 1980-2000, la concentration moyenne du radical OH a augmenté de $3.5 \pm 2.2\%$ et le temps de vie du méthane a diminué d'environ $4.3 \pm 1.9\%$ en réponse à la légère variation de la concentration de OH et au réchauffement global (0.4 ± 0.2 Kelvin). Il reste également de grandes incertitudes concernant les variations interannuelles du radical OH, puisque Montzka et al. (2011) suggèrent que la variabilité interannuelle n'est que de quelques pourcents tandis que Bousquet et al. (2005) et Prinn (2005) affirment qu'elle atteint 10% à 20%. La réduction des incertitudes sur la connaissance du radical OH est une nécessité pour la compréhension du cycle du méthane. Ceci passe par une amélioration des modèles climatiques de chimie actuels en améliorant la connaissance et la représentation des processus physico-chimiques impactant la concentration de OH dans l'atmosphère. Une autre piste envisagée est d'augmenter les mesures directes des composés agissant directement sur OH (comme le CH_3CCl_3) pour mieux comprendre la distribution spatio-temporelle de ce gaz.

Conclusions du chapitre

Le méthane joue un rôle significatif dans le climat de notre planète par son impact sur l'équilibre radiatif, la composition chimique et la capacité oxydante de l'atmosphère.

Une connaissance précise des processus contribuant à l'émission ou à la destruction de méthane dans l'atmosphère est essentielle pour mieux comprendre le climat de la Terre et son évolution au cours des siècles à venir. Cependant, l'état de l'art des connaissances nous montre qu'il existe encore de grandes incertitudes sur les variabilités du cycle biogéochimique du méthane. Ces incertitudes concernent l'estimation de la source mondiale de méthane, des émissions naturelles notamment dues aux zones humides, et du puits par OH.

La réduction de ces incertitudes peut passer de façon complémentaire par la mise en oeuvre d'études de processus (approche montante) et par la modélisation inverse (approche descendante). Comme il le sera présenté dans le chapitre suivant, un système d'inversion atmosphérique permet de fournir de nombreuses informations sur l'intensité et la variabilité des sources et puits de méthane atmosphérique, dans la mesure où il est nourri de suffisamment d'observations et où les erreurs apportées par le modèle de chimie-transport employé ne sont pas trop fortes.

La modélisation inverse appliquée au méthane atmosphérique : principes théoriques et description de PYVAR

IL EST, en général, plus naturel d'étudier et de déterminer les conséquences d'un phénomène en connaissant ses causes, que de déterminer, à l'inverse, les causes d'un phénomène à partir de l'observation des conséquences provoquées par ce phénomène. En effet, on rencontre de multiples exemples dans la nature de ce qu'on pourrait appeler des « problèmes directs » où l'on cherche à expliquer ou représenter les conséquences d'un phénomène à partir de l'observation de ses causes. Par exemple, à partir des relevés des quantités de précipitations, on peut déterminer l'occurrence ou non d'inondations. Dans un autre contexte, la conséquence de conditions climatiques anormales sur une zone agricole peut provoquer la flambée du cours d'une matière première. En revanche, les problèmes dits « inverses » n'apparaissent pas naturellement mais peuvent être sources d'informations très riches. Par exemple, en imagerie médicale, l'échographie repose sur la résolution d'un problème inverse : en émettant de brèves impulsions d'une onde acoustique et en mesurant ces ondes acoustiques, il est possible d'obtenir des informations sur les tissus humains à partir des discontinuités de la vitesse de propagation du milieu. La détermination de l'épicentre d'un séisme à partir de la mesure des ondes sismiques réparties à divers endroits de la surface est également un problème inverse.

En sciences atmosphériques, on parle généralement de « problèmes directs » lorsqu'on veut simuler la concentration d'un gaz à partir de la connaissance des flux de ce gaz vers l'atmosphère. Au contraire, déterminer les émissions d'un gaz à partir de la connaissance des concentrations atmosphériques du gaz est un « problème inverse ». Dans ce contexte, résoudre un problème inverse contraint par des observations de la concentration de méthane atmosphérique peut nous donner des informations précieuses sur le cycle du méthane actuel et permettre ainsi de réduire les incertitudes existantes.

Dans ce chapitre, on présente à partir d'un exemple simple (section 3.1) les différentes caractéristiques d'un problème inverse atmosphérique. On présentera ensuite les caractéristiques importantes des systèmes inverses visant à optimiser les sources et puits de méthane à l'échelle planétaire (section 3.2). La section 3.3 détaille le système inverse, PYVAR-LMDz-SACS, utilisé au LSCE. Les différentes composantes du système inverse utilisées au cours de ce travail sont décrits dans la section 3.4 et la section 3.5 présente les limitations majeures qui affectent les modélisations inverses actuelles.

3.1 Exemple simple à deux dimensions

Pour se familiariser avec les enjeux et les équations usuelles du problème inverse appliqué aux sciences atmosphériques, partons d'un exemple schématique simple. On considère un grand local où est enfermé, durant 1 mois, un ruminant qui émet un flux inconnu de méthane d'origine digestive. Nous cherchons alors à déterminer ce flux en n'ayant à disposition qu'un seul système de mesures de concentrations du méthane. On supposera que ce flux est émis de manière continue. Pour la simplification des calculs, supposons également que la quantité de méthane émise est instantanément mélangée dans le local et que ce local est opaque à l'air extérieur. Enfin, supposons que la concentration de méthane dans le local est nulle à l'instant initial.

On mesure alors la concentration de méthane dans le local de volume $V_{ol} = 500 \text{ m}^3$ à deux instants distincts. L'instrument de mesure indique que la concentration de méthane est de 7.4 g/m^3 au temps $\Delta T_1 = 2$ semaines et de 13.3 g/m^3 au temps $\Delta T_2 = 4$ semaines.

Présenté comme cela le problème semble sur-déterminé puisque deux équations permettent de déterminer le seul taux d'émission de méthane par le ruminant. Cependant, une mesure aussi précise qu'elle puisse être n'est jamais parfaite et la prise en compte des erreurs dans le problème inverse est cruciale. Cela rend le problème sous-déterminé puisque les erreurs affectées aux mesures sont inconnues. Cependant, on connaît les caractéristiques des instruments qui ont produit ces mesures. Dans notre cas, on sait que l'instrument que l'on utilise est sans biais, ce qui statistiquement s'écrit : $E(\varepsilon_1^0) = E(\varepsilon_2^0) = 0$ ($E(x)$ représente l'espérance mathématique de la variable x). La précision des mesures faites par l'instrument est connue et est donnée par l'écart-type sur les erreurs de mesures. L'écart-type, σ_1^0 , des erreurs sur la première mesure est de $\sigma_1^0 = \sqrt{E((\varepsilon_1^0)^2)} = 6 \text{ g/m}^3$. L'instrument subissant une légère dégradation entre les deux mesures, l'écart-type sur la 2^e mesure est de $\sigma_2^0 = 8 \text{ g/m}^3$.

Le système d'équations reliant les deux mesures, y_1^0 et y_2^0 , au flux « vrai » (exprimé en grammes par unité de temps), x^t , que l'on cherche à déterminer, s'écrit alors :

$$\begin{cases} y_1^0 = \left(\frac{\Delta T_1}{V_{ol}} \right) x^t + \varepsilon_1^0 \\ y_2^0 = \left(\frac{\Delta T_2}{V_{ol}} \right) x^t + \varepsilon_2^0 \end{cases}$$

ε_1^0 et ε_2^0 sont les erreurs respectives des deux mesures dont on a donné les caractéristiques statistiques précédemment. On peut réécrire ce système sous la forme matricielle suivante :

$$\mathbf{y}^0 = \mathbf{H}x^t + \boldsymbol{\varepsilon}^0 \quad (3.1)$$

avec $\mathbf{y}^0 = \begin{pmatrix} y_1^0 \\ y_2^0 \end{pmatrix}$, $\boldsymbol{\varepsilon}^0 = (\varepsilon_1^0 \varepsilon_2^0)$ et $\mathbf{H} = \begin{pmatrix} \frac{\Delta T_1}{V_{ol}} \\ \frac{\Delta T_2}{V_{ol}} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} h_1 \\ h_2 \end{pmatrix}$. A noter que la matrice \mathbf{H} permet de faire le passage entre l'espace des flux et l'espace des concentrations.

3.1.1 Estimation statistique

On cherche alors la solution optimale, x^a , combinaison linéaire de y_1^0 et y_2^0 telle que $x^a = k_1 y_1^0 + k_2 y_2^0$. On veut notamment que x^a soit le meilleur estimateur statistique du « vrai » taux d'émission de méthane, x^t . En particulier, on recherche un estimateur non biaisé ($E(\varepsilon^a) = 0$), où ε^a représente l'erreur sur l'estimateur x^a .

Après un calcul rapide et en considérant que les erreurs des deux mesures sont non biaisées, on trouve que l'estimateur x^a est non biaisé si et seulement si : $k_1 h_1 + k_2 h_2 = 1$.

Parmi tous les estimateurs non biaisés, on cherche celui qui minimise la variance d'erreur d'estimation, σ_a^2 , où $\sigma_a^2 = E[(\varepsilon^a)^2]$.

Ainsi, en utilisant la condition précédente sur k_1 et k_2 et en considérant également que les erreurs des deux mesures sont non corrélées entre elles, on obtient : $\sigma_a^2 = k_1^2 \sigma_1^{o2} + ((1 - k_1 h_1)/h_2)^2 \sigma_2^{o2}$.

La valeur optimale de k_1 est alors obtenue pour $\frac{d\sigma_a^2}{dk_1} = 0$.

On obtient alors : $k_1 = h_1 \sigma_2^{o2} / ((h_2 \sigma_1^o)^2 + (h_1 \sigma_2^o)^2)$ et $k_2 = h_2 \sigma_1^{o2} / ((h_2 \sigma_1^o)^2 + (h_1 \sigma_2^o)^2)$

On vérifie tout de même que cet extrémum de $\sigma_a^2(k_1)$ correspond bien à un minimum. En effet, la fonction est convexe puisque $\frac{d^2\sigma_a^2}{d^2k_1} = 2(\sigma_1^{o2} + (\frac{h_1}{h_2})^2 \sigma_2^{o2}) > 0$.

Finalement, il vient que l'expression du flux optimal de méthane par le ruminant est :

$$x^a = \frac{h_1 \sigma_2^{o2}}{(h_2 \sigma_1^o)^2 + (h_1 \sigma_2^o)^2} y_1^0 + \frac{h_2 \sigma_1^{o2}}{(h_2 \sigma_1^o)^2 + (h_1 \sigma_2^o)^2} y_2^0 \quad (3.2)$$

L'expression de l'écart-type d'estimation associée est :

$$\sigma^a = \frac{\sigma_1^o \sigma_2^o}{\sqrt{(h_2 \sigma_1^o)^2 + (h_1 \sigma_2^o)^2}} \quad (3.3)$$

Numériquement, on obtient $x^a = 87.7$ kg/an et $\sigma^a = 3.7$ kg/an. La densité de probabilité de la loi normale de moyenne x^a et de variance $(\sigma^a)^2$ est représentée par la courbe rouge sur la figure 3.1.

Il est également important de noter que l'expression du taux d'émission de méthane est le minimum de la forme quadratique suivante :

$$J(x) = \frac{(h_1 x - y_1^0)^2}{2\sigma_1^o} + \frac{(h_2 x - y_2^0)^2}{2\sigma_2^o}$$

On reconnaît alors l'expression obtenue selon la méthode des moindres carrés pondérés. En effet, on cherche à minimiser la distance entre les concentrations mesurées et les concentrations simulées pondérées par les écarts-types des erreurs sur les mesures.

Une autre manière d'aborder les choses est de considérer que chacune des erreurs d'observation est distribuée suivant une loi normale. Ainsi, la probabilité de l'erreur d'observation est donnée par l'expression : $p(\varepsilon^o) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp(-\frac{\varepsilon^{o2}}{2\sigma^2})$.

Dans le cas d'un système considérant deux observations, y_1^0 et y_2^0 , la valeur la plus probable de l'estimateur que l'on cherche est celle pour laquelle la probabilité jointe de y_1^0 et y_2^0 est maximale. L'expression de la probabilité jointe est donnée par :

$$\begin{aligned} p(\varepsilon_1^o, \varepsilon_2^o) &= p(\varepsilon_1^o) p(\varepsilon_2^o) \\ &\propto \exp \left[- \left(\frac{(h_1 x^t - y_1^0)^2}{2\sigma_1^{o2}} + \frac{(h_2 x^t - y_2^0)^2}{2\sigma_2^{o2}} \right) \right] \end{aligned}$$

Il vient alors que la valeur de l'estimateur, x^a , la plus probable est celle pour laquelle la somme à l'intérieur de l'exposant est minimale. On retrouve alors le problème de la minimisation de la forme quadratique obtenue dans le cadre d'une approche « moindres carrés pondérés ».

Finalement, on a montré ici à travers diverses approches que le problème inverse revient à la minimisation d'une fonction quadratique. De plus, cette forme quadratique peut se mettre sous la forme d'un produit matriciel :

$$J(x) = \frac{1}{2}(\mathbf{H}\mathbf{x} - \mathbf{y}_0)^T \mathbf{R}^{-1}(\mathbf{H}\mathbf{x} - \mathbf{y}_0) \quad (3.4)$$

Les matrices \mathbf{H} , \mathbf{x} et \mathbf{y}_0 ont été introduites précédemment. \mathbf{R} est la matrice des erreurs sur les mesures. Ici, elle prend la forme : $\mathbf{R} = \begin{pmatrix} (\sigma_1^0)^2 & 0 \\ 0 & (\sigma_1^0)^2 \end{pmatrix}$

On peut alors étendre la notation que l'on a utilisée ici dans le cadre de notre problème à deux dimensions, à un problème à n dimensions comme c'est le cas pour le système atmosphérique à l'échelle planétaire.

3.1.2 Approche bayésienne

Dans le cadre de la modélisation inverse appliquée à l'estimation des sources et puits de gaz à effet de serre, le problème inverse est mal posé : les observations n'illuminent pas tout l'espace des observations pouvant impliquer une non-unicité de la solution du problème inverse. Le problème inverse doit alors être régularisé. La régularisation du problème inverse est généralement traitée grâce à une connaissance *a priori* des paramètres que l'on cherche à estimer. Par exemple, pour l'estimation des flux de méthane, notre connaissance actuelle du cycle du méthane nous laisse à penser que les émissions annuelles globales de méthane se situent dans une large fourchette allant de 526 à 852 TgCH₄/an (Kirschke et al., 2013). Cette information, bien que nécessitant une réduction importante de l'erreur qui lui est associée, nous permet d'éliminer des solutions fantaisistes du problème inverse. On parle alors d'estimation « bayésienne » puisqu'on entre dans le cadre d'application du théorème de Bayes¹. La section 3.4.1 présente plus en détail les méthodes qui permettent d'obtenir des informations *a priori* sur les flux des gaz à effet de serre (et du méthane en particulier). Dans le cas de notre exemple simple, la régularisation du problème inverse peut apparaître moins cruciale car la dimension du problème est petite. Cependant, on verra que l'information *a priori* apporte bien une information supplémentaire non négligeable.

Pour Bayes, la fonction de densité de probabilité (FDP) des erreurs de l'estimé *a posteriori* ayant une connaissance *a priori* de l'estimé $\rho(\mathbf{x}|\mathbf{y})$, dépend directement des FDPs des erreurs sur l'*a priori* $\rho(\mathbf{x})$ et sur les observations connaissant l'*a priori* $\rho(\mathbf{y}|\mathbf{x})$. C'est le théorème de Bayes : $\rho(\mathbf{x}|\mathbf{y}) = K\rho(\mathbf{x})\rho(\mathbf{y}|\mathbf{x})$, où K est une constante.

En considérant que les fonctions de densité de probabilité $\rho(\mathbf{x})$ et $\rho(\mathbf{y}|\mathbf{x})$ suivent une loi gaussienne, on peut écrire que :

$$\begin{cases} \rho(\mathbf{y}|\mathbf{x}) = K_1 \exp\left(-\frac{1}{2}(\mathbf{H}\mathbf{x} - \mathbf{y}_0)^T \mathbf{R}^{-1}(\mathbf{H}\mathbf{x} - \mathbf{y}_0)\right) \\ \rho(\mathbf{x}) = K_2 \exp\left(-\frac{1}{2}(\mathbf{x} - \mathbf{x}_{\text{prior}})^T \mathbf{B}^{-1}(\mathbf{x} - \mathbf{x}_{\text{prior}})\right) \end{cases}$$

$\mathbf{x}_{\text{prior}}$ est alors le vecteur de l'état *a priori* des paramètres que l'on cherche à estimer. Les erreurs associées à cette connaissance *a priori* sont contenues dans la matrice \mathbf{B} . K_1 et K_2 sont des constantes.

1. $p(A|B) = p(B)p(B|A)/p(A)$, où A et B sont deux événements. $p(A)$ et $p(B)$ sont leurs probabilités respectives. $p(A|B)$ est la probabilité de A lorsque B est réalisé et $p(B|A)$ est la probabilité de B lorsque A est réalisé.

En substituant les deux équations précédentes dans le théorème de Bayes, on obtient l'expression de la FDP de l'estimé :

$$\rho(x|y) = K_3 \exp(-J(x))$$

avec l'expression de J suivante :

$$J(x) = \frac{1}{2} [(\mathbf{H}\mathbf{x} - \mathbf{y}_o)^T \mathbf{R}^{-1} (\mathbf{H}\mathbf{x} - \mathbf{y}_o)] + \frac{1}{2} [(\mathbf{x} - \mathbf{x}_{\text{prior}})^T \mathbf{B}^{-1} (\mathbf{x} - \mathbf{x}_{\text{prior}})] \quad (3.5)$$

$$= J_{\text{obs}} + J_{\text{apriori}} \quad (3.6)$$

Cette fonction coût ressemble fortement à la forme quadratique de l'équation 3.4. En effet, la première partie de l'équation est totalement identique à l'équation 3.4 et dépend uniquement de l'information apportée par les observations. La seconde partie est relative à l'information supplémentaire qui a été ajoutée grâce à l'approche bayésienne. Ainsi, la fonction coût mesure comment la solution \mathbf{x} satisfait à la fois les observations (J_{obs}) et l'information *a priori* (J_{apriori}) pondérée par les erreurs d'observation et les erreurs sur l'*a priori*. La solution optimale est alors obtenue en maximisant $\rho(x|y)$, ce qui revient à minimiser la fonction J .

L'hypothèse sur la gaussianité des FDPs des observations et de la connaissance *a priori* implique que la FDP de l'état *a posteriori* est également gaussienne.

Ainsi, on peut écrire $\rho(x|y)$ sous la forme :

$$\rho(x|y) = K' \exp\left(-\frac{1}{2}(\mathbf{x} - \mathbf{x}^a)^T \mathbf{Q}^{-1} (\mathbf{x} - \mathbf{x}^a)\right) \quad (3.7)$$

La matrice \mathbf{Q} est la matrice de variance/covariance d'erreur sur le flux optimal (erreur d'estimation) et le vecteur \mathbf{x}^a est le flux optimal. Finalement, les expressions du flux optimal et de la matrice de variance/covariance associée sont :

$$\mathbf{Q} = (\mathbf{H}^T \mathbf{R}^{-1} \mathbf{H} + \mathbf{B}^{-1})^{-1} \quad (3.8)$$

$$= \mathbf{B} - \mathbf{B} \mathbf{H}^T (\mathbf{H} \mathbf{B} \mathbf{H}^T + \mathbf{R}) \mathbf{H} \mathbf{B} \quad (3.9)$$

$$\mathbf{x}^a = (\mathbf{H}^T \mathbf{R}^{-1} \mathbf{H} + \mathbf{B}^{-1})^{-1} (\mathbf{H}^T \mathbf{R}^{-1} \mathbf{y}_o + \mathbf{B}^{-1} \mathbf{x}_{\text{prior}}) \quad (3.10)$$

$$= \mathbf{x}_{\text{prior}} + \mathbf{B} \mathbf{H}^T (\mathbf{H} \mathbf{B} \mathbf{H}^T + \mathbf{R})^{-1} (\mathbf{y}_o - \mathbf{H} \mathbf{x}_{\text{prior}}) \quad (3.11)$$

L'hypothèse de gaussianité, évoquée précédemment, est régulièrement discutée dans la communauté puisque le caractère gaussien des erreurs n'est pas établi et que des résultats inattendus peuvent affecter les flux optimisés sous cette hypothèse. En effet, supposer une distribution gaussienne des erreurs sur les émissions peut, lorsque les erreurs sont du même ordre de grandeur que l'émission, entraîner des émissions négatives. Certaines alternatives existent pour remédier à cela. Par exemple, [Bergamaschi et al. \(2009\)](#) utilisent une distribution semi-exponentielle et [Stohl et al. \(2009\)](#) réduisent localement les erreurs sur les émissions *a priori* pour éviter tout incrément sur les émissions menant à des émissions optimisées négatives. Cependant, il est généralement bien accepté d'utiliser une distribution normale pour plusieurs raisons :

- le problème est bien plus facile à résoudre sous cette hypothèse
- les statistiques d'erreurs sont de toute manière peu connues
- l'expérience montre que les résultats ainsi obtenus sont raisonnables

Revenons à notre exemple simple à deux dimensions pour illustrer l'apport de l'information *a priori* sur les flux. Dans cet exemple précis, on base notre connaissance *a priori* de l'émission de méthane par un ruminant sur l'étude de Vermorel (1995). Ainsi on considère que : $x_{\text{prior}} = 99 \pm 5$ kg/an. En utilisant l'équation 3.10 on obtient alors :

$$\begin{aligned} x^a &= \frac{h_1(\sigma_2^o \sigma_b)^2 y_o^1 + h_2(\sigma_1^o \sigma_b)^2 y_o^2 + (\sigma_1^o \sigma_2^o)^2 x_{\text{prior}}}{(h_1 \sigma_2^o \sigma_b)^2 + (h_2 \sigma_1^o \sigma_b)^2 + (\sigma_1^o \sigma_2^o)^2} \\ &= 91.6 \text{ kg/an} \end{aligned}$$

L'expression de l'écart-type d'estimation associé devient :

$$\begin{aligned} \sigma^a &= \frac{\sigma_1^o \sigma_2^o \sigma_b}{\sqrt{(h_1 \sigma_2^o \sigma_b)^2 + (h_2 \sigma_1^o \sigma_b)^2 + (\sigma_1^o \sigma_2^o)^2}} \\ &= 2.9 \text{ kg/an} \end{aligned}$$

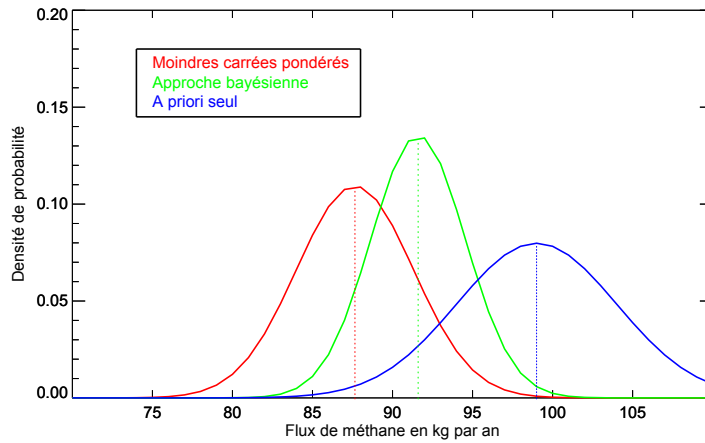


FIGURE 3.1: Densités de probabilité des lois du flux de méthane optimisé grâce à une approche en moindres carrés pondérés (courbe rouge) et optimisé grâce à une approche bayésienne (courbe verte). La densité de probabilité de la loi de l'*a priori* est également tracée en bleu.

La figure 3.1 montre les FDP des erreurs de l'état *a priori* (courbe bleue), de l'état *a posteriori* lorsque l'on prend en compte 2 observations (courbe rouge ; approche moindres carrés pondérés) et de l'état *a posteriori* lorsque l'on prend en compte à la fois les 2 observations et une connaissance *a priori* du flux de méthane du ruminant (courbe verte ; approche bayésienne).

L'état optimisé dans l'approche bayésienne se situe entre l'état *a priori* et l'état optimal obtenu lorsque 2 mesures de la concentration atmosphérique de méthane sont utilisées, montrant que le système prend en considération les différentes informations pour retrouver le flux vrai. En effet, le système s'éloigne légèrement de l'état donné par l'apport de 2 mesures atmosphériques et se rapproche de l'état *a priori* (qui est, ici, un état déterminé par une mesure directe du flux sur d'autres ruminants) tout en restant dans des valeurs cohérentes du flux lorsque l'on considère les erreurs associées à chaque information.

Il est également montré que l'erreur d'estimation est réduite lorsque l'information *a priori* est considérée en complément de l'information donnée par les 2 mesures de concentrations. En effet, l'erreur sur l'estimation passe de 3.7 kg/an lorsqu'on ne considère que 2 mesures à 2.9 kg/an lorsqu'une connaissance *a priori* est ajoutée dans la

procédure d'estimation.

3.2 La modélisation inverse des concentrations atmosphériques de méthane à l'échelle planétaire

Le formalisme du problème inverse appliqué au système atmosphérique à l'échelle planétaire est très similaire à ce qui a été présenté dans le cas simplifié de la section précédente. Le problème revient en effet à minimiser la fonction coût, J , établie dans la section 3.1.2. Cependant, plusieurs différences apparaissent lorsqu'on considère l'optimisation des flux de méthane à l'échelle planétaire.

Tout d'abord, l'opérateur qui relie l'espace des émissions à l'espace des concentrations n'est pas forcément linéaire. Dans le cas du méthane, la destruction chimique du méthane par le radical OH rend le problème inverse non linéaire. Ainsi, on écrit, par convention, l'opérateur sous la forme H , contrairement à \mathbf{H} . Seulement lorsque le problème inverse est linéaire, l'opérateur H se réduit à un produit matrice-vecteur $H(x) = \mathbf{H}x$. En pratique, l'opérateur H est représenté par un modèle de chimie-transport qui simule les concentrations atmosphériques à partir d'émissions de surface.

Ensuite, les dimensions du problème que l'on considère sont très grandes. Le vecteur d'état \mathbf{x} contient les flux de méthane que l'on cherche à estimer à une résolution temporelle relativement courte (en général, de quelques jours à un mois) dans chaque région considérée (de la région représentée par la cellule du modèle à la taille d'un continent). Par exemple, on verra dans la section 3.3.3 que PYVAR optimise les flux de méthane à l'échelle du modèle de transport utilisé (dans notre cas, 96 points en longitude et latitude) et pour chaque semaine. Ainsi, pour une inversion d'une année (52 semaines), le vecteur d'état a une dimension proche de 500 000 ($96 \times 96 \times 52 \sim 500\,000$). D'autres paramètres sont également optimisés et donc contenus dans ce vecteur. C'est le cas par exemple des conditions initiales ou d'autres flux de gaz atmosphériques qui permettent de traiter les réactions chimiques mettant en jeu le méthane. Ainsi, le vecteur d'état peut très vite atteindre une dimension proche du million et au delà. Le vecteur des observations, \mathbf{y}_o , peut également être de grande dimension. Une inversion typique des flux de méthane à l'échelle mondiale pour une année contrainte par des concentrations de surface considèrent environ 50 000 observations. En effet, les flux sont, généralement, contraints par les moyennes journalières d'une centaine de stations de surface ($365 \times 100 = 36\,500$ observations). Il faut rajouter à cela les observations de méthyl-chloroforme qui permettent d'optimiser les concentrations de OH. Si on utilise des données de la colonne totale de méthane reconstruites par satellite, la taille du vecteur des observations grandit encore. Par exemple, un an de données GOSAT correspond à environ 60 000 mesures de la colonne totale. On revient en détail sur la constitution du vecteur d'état, \mathbf{x} , pour le système inverse PYVAR-LMDz-SACS dans la section 3.3.3 et sur les données constituant le vecteur d'observation, \mathbf{y}_o , en section 3.4.3.

D'autres spécificités de la modélisation inverse deviennent essentielles dans le cas d'une étude à l'échelle planétaire. C'est le cas, par exemple, de la détermination des matrices de variance/covariance \mathbf{B} et \mathbf{R} , qui peuvent très vite complexifier le problème si l'on considère des corrélations spatiales ou temporelles. Le détail de la spécification de ces matrices d'erreurs pour notre système inverse est donné dans la section 3.4.4. La manière dont est résolu le problème inverse peut également fortement pénaliser les temps de calcul nécessaires à la détermination de l'état optimal. Les deux principales approches qui existent pour résoudre le problème d'inversion du méthane atmosphérique sont présentées dans la section suivante.

3.2.1 Résolution du problème inverse

La manière dont le problème inverse est résolu est également une caractéristique importante du système inverse. En pratique il existe deux approches principales pour obtenir une estimation des flux de gaz atmosphériques par modélisation inverse : une approche analytique et une approche variationnelle. Depuis peu, quelques systèmes basés sur des méthodes d'ensembles ont également fait leur apparition.

3.2.1.1 Approche analytique

On parle d'approche analytique lorsque l'on résout directement les relations analytiques exposées dans la section 3.1.2. C'est ce que l'on a fait dans l'exemple simple du début du chapitre. De cette manière, on obtient directement la valeur explicite de l'état optimal et des incertitudes qui lui sont associées. Par conséquent, cette méthode requiert le calcul de l'inverse de certaines matrices ou la détermination de la transposée de \mathbf{H} . Ainsi, on comprend que l'on peut utiliser cette approche lorsque la taille du problème inverse n'est pas trop grande. Dans le cas contraire, il ne serait pas possible de calculer dans un temps raisonnable certaines parties de l'équation 3.10. Ainsi, on découpe généralement la région d'étude (le monde par exemple) en plusieurs grandes régions et on estime le flux dans chacune de ces grandes régions (Bousquet et al., 1999). Il est à noter également que l'équation 3.10 peut être réarrangée sous la forme :

$$\mathbf{x} = \mathbf{x}_{\text{prior}} + \mathbf{B}\mathbf{H}^T(\mathbf{H}\mathbf{B}\mathbf{H}^T + \mathbf{R})^{-1}(\mathbf{y}_{\text{obs}} - \mathbf{H}\mathbf{x}_{\text{prior}}) \quad (3.12)$$

En effet, le temps de calcul de l'une ou l'autre des équations peut-être très différent selon le nombre M d'observations et le nombre N de paramètres à estimer. L'équation 3.10 requiert qu'une matrice de taille $N \times N$ soit inversée tandis que l'équation 3.12 requiert qu'une matrice $M \times M$ soit inversée. Ainsi, si le nombre d'observations est supérieure au nombre de paramètres à estimer ($M > N$) il est préférable de résoudre l'équation 3.10 et vice-versa.

On n'entrera pas plus en détail dans les spécificités de cette méthode puisque les inversions atmosphériques mises en oeuvre au cours de cette thèse ont utilisé une autre approche : l'approche variationnelle.

3.2.1.2 Approche variationnelle

On parle d'approche variationnelle lorsque l'on résout le problème inverse en minimisant la fonction coût de manière itérative avec un algorithme de type « Gradient-Conjugué ». Pour cela, il faut être capable de calculer le gradient de la fonction coût (équation 3.5).

On considère alors l'opérateur linéaire tangent, \mathbf{H}' , de H défini par : $H(\mathbf{x}) = H(\mathbf{x}') + \mathbf{H}'(\mathbf{x} - \mathbf{x}')$. L'opérateur non-linéaire H est linéarisé autour de \mathbf{x}' .

L'expression gradient de la fonction coût est alors donnée par la relation suivante :

$$\frac{\partial J}{\partial \mathbf{x}} = \mathbf{H}'^T \mathbf{R}^{-1}(\mathbf{H}(\mathbf{x}) - \mathbf{y}_o) + \mathbf{B}^{-1}(\mathbf{x} - \mathbf{x}_{\text{prior}}) \quad (3.13)$$

La difficulté du calcul du gradient de la fonction coût repose sur le calcul des matrices inverses de \mathbf{R} et \mathbf{B} et, surtout, du modèle adjoint (\mathbf{H}'^T). Cependant, le calcul des inverses de \mathbf{R} et \mathbf{B} est plutôt efficace car la matrice \mathbf{R} est diagonale et la matrice \mathbf{B} est creuse. Il n'en est rien pour le modèle adjoint. Le modèle adjoint permet de calculer la

sensibilité des variables d'état aux écarts entre les concentrations mesurées et simulées. Le développement et la maintenance d'un modèle adjoint est généralement un travail très lourd mais il permet, une fois développé, de fournir des informations essentielles. Le calcul des matrices \mathbf{B}^{-1} et \mathbf{R}^{-1} et le développement du modèle adjoint permet alors de démarrer le processus itératif dans le but de trouver l'état optimal qui minimise la fonction coût. On débute le processus en utilisant l'*a priori* comme première estimation de l'état optimisé et on enchaîne les différentes étapes suivantes :

- détermination de l'état *a priori*, $\mathbf{x}_{\text{prior}}$
- calcul de J , selon l'équation 3.5, en utilisant le modèle direct ($J = J_{\text{obs}}$ lors de la première itération)
- calcul du gradient de J , selon l'équation 3.13, en utilisant le modèle adjoint
- utilisation de l'algorithme M1QN3 (Gilbert and Lemaréchal, 1989) pour trouver une mise à jour de l'état optimal, $\mathbf{x}_{\text{optimal}}$
- la procédure est répétée en prenant comme point de départ le nouveau $\mathbf{x}_{\text{optimal}}$

La procédure est terminée lorsque le critère d'arrêt de l'optimisation est atteint. En général, le critère d'arrêt correspond à un nombre limite d'itérations ou à une réduction satisfaisante de la norme du gradient de J . Dans cette thèse, on choisit d'arrêter la procédure d'inversion quand la norme du gradient de J est réduit de plus de 99%.

On reviendra sur l'approche variationnelle et, en particulier, le modèle adjoint dans la section 6.1 puisqu'au cours de ma thèse, j'ai été amené à développer et valider les codes adjoints pour les nouvelles routines réalisant le transport des traceurs dans LMDz.

3.2.1.3 Méthodes d'ensembles

Il existe quelques groupes de recherches utilisant des méthodes ensemblistes pour estimer les sources et puits de méthane. Ces groupes utilisent en générale une formulation du problème inverse basée sur une adaptation du filtre de Kalman d'ensemble développé par Evensen (1994). Ces méthodes présentent l'avantage de pouvoir estimer les flux de méthane à une résolution spatio-temporelle plus fine que ce qui est fait dans l'approche analytique, sans passer par le développement et la maintenance d'un modèle adjoint comme ce qui est nécessaire dans l'approche variationnelle.

Finalement, les différentes caractéristiques (grandes quantités de données, matrices de grandes tailles, méthodes numériques complexes) des systèmes inverses font que la mise en oeuvre du problème inverse pour estimer les émissions de méthane à l'échelle planétaire est complexe et requiert l'utilisation de modèles numériques pour pouvoir réaliser efficacement l'estimation des sources et puits de méthane. On détaille, par la suite, les différents modèles numériques composant le système inverse, PYVAR-LMDz-SACS, développé au LSCE.

3.3 Le système inverse au LSCE : PYVAR-LMDz-SACS

PYVAR-LMDz-SACS est le système inverse qui a été développé au LSCE par Chevallier et al. (2005) et ensuite adapté et/ou amélioré par différents contributeurs. Il comporte trois modules principaux : le modèle de chimie-transport simulant le transport de gaz atmosphériques basé sur le modèle de circulation générale de l'atmosphère LMDz (Hourdin et al., 2006), le modèle simplifié de chimie atmosphérique (SACS, Simplified Atmospheric Chemistry System (Pison et al., 2009)), et le module PYVAR (Chevallier et al., 2005) permettant de combiner ces différents modèles et de réaliser l'optimisation des sources et puits de méthane grâce à la théorie des problèmes inverses.

3.3.1 Le modèle de chimie-transport : une version « offline » du modèle de circulation générale LMDz

Le modèle de chimie-transport utilisé est la version débranchée du modèle de circulation générale du Laboratoire de Météorologie Dynamique (LMDz) (Hourdin and Armengaud, 1999; Hourdin et al., 2006). La figure 3.2 montre une représentation schématique du modèle complet LMDz, où on voit que le modèle est essentiellement découpé en deux parties distinctes : la partie dynamique (« LMDz 3D dynamical core ») et la partie physique (« LMDz parameterized physics »).

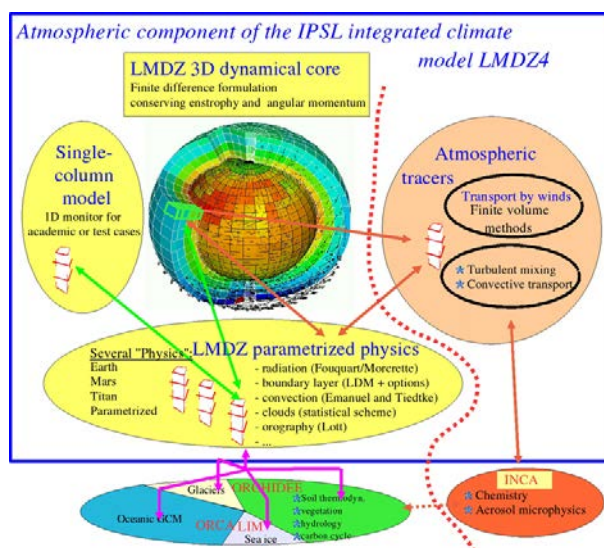


FIGURE 3.2: Représentation schématique de la structure du modèle LMDz issue du site web du LMD (<http://lmdz.lmd.jussieu.fr/>). On distingue la partie dynamique (« LMDz 3D dynamical core ») et la partie physique du modèle (« LMDz parameterized physics »), et leurs interactions avec la branche indépendante réalisant le transport atmosphérique des traceurs (« Atmospheric tracers »).

La partie dynamique contient la résolution numérique des équations de la mécanique des fluides sur une grille tridimensionnelle. La partie physique résout les paramétrisations des phénomènes physiques qui ne peuvent pas être explicitement représentés par la partie dynamique puisqu'ils se produisent à des échelles inférieures à la résolution du modèle. C'est le cas par exemple du mélange turbulent dans la couche limite ou de la convection profonde.

Les échanges horizontaux entre mailles sont réalisées dans la partie dynamique du modèle, alors que la partie physique peut être vue comme une juxtaposition de « colonnes » atmosphériques indépendantes l'une de l'autre. Cette spécificité du modèle rend tout à fait possible le test de paramétrisations physiques dans des configurations unidimensionnelles du modèle (« Single Column Model » (sur la gauche de la figure)). Le transport des traceurs par LMDz est réalisé dans une branche indépendante du modèle (« Atmospheric tracers », en rouge clair), ce qui permet assez facilement son activation ou sa désactivation selon le but recherché dans les simulations mises en oeuvre. Les variables dynamiques, physiques et chimiques utiles pour le transport des traceurs doivent être fournies à cette partie spécifique du modèle lorsque la branche « Atmospheric tracers » est activée.

Dans le système inverse PYVAR-LMDz-SACS, c'est cette branche du modèle LMDz (la partie « Atmospheric tracers » de la figure 3.2) qui est complètement reprise pour réali-

ser le transport des traceurs. Les variables dynamiques et physiques (ou « flux de masse d'air ») utiles au transport des traceurs sont pré-calculées par le modèle LMDz complet au cours de simulations climatiques et lues par PYVAR-LMDz-SACS au cours des inversions. On dit alors qu'on utilise une version débranchée (ou « offline ») du modèle LMDz dans le système inverse.

Au début de cette thèse, la version offline de LMDz utilisée dans PYVAR possédait une résolution horizontale de 96 points en longitude et 72 points en latitude ($3.75^\circ \times 2.5^\circ$) et une résolution verticale de 19 niveaux entre la surface et 3 hPa. On a fait évoluer cette version du modèle vers une version caractérisée par une résolution horizontale de 96 points en longitude et en latitude ($3.75^\circ \times 1.875^\circ$), et une résolution verticale de 39 niveaux (résolution de 100 m dans la couche limite et de 1.5 km dans la haute troposphère/basse stratosphère). Ainsi, les résultats des simulations directes ou inverses présentés dans les chapitres suivants sont relatifs à une résolution du modèle de $96 \times 96 \times 39$ si aucune autre résolution n'est explicitement spécifiée.

L'étude de la modélisation du transport atmosphérique de gaz traces dans LMDz et son impact sur les inversions de méthane constitue une grande partie de ce travail de thèse. Ainsi, on reviendra largement sur la thématique « Transport Atmosphérique des Traceurs » dans les chapitres 4 et 5. On détaillera notamment les différentes paramétrisations physiques utilisées et les caractéristiques des différentes versions du modèle LMDz qui en découlent dans le chapitre 5.

3.3.2 Le modèle de chimie simplifié : SACS

SACS (Simplified Atmospheric Chemistry System) est un modèle de chimie simplifié et linéarisé de la chaîne d'oxydation du méthane basé sur le module de chimie INCA (INteractions Chimie-Aérosols, (Hauglustaine et al., 2004)). Il résout les interactions d'un nombre limité de cinq espèces (CH_4 , CH_2O , CO , H_2 et OH), intégrant la chaîne d'oxydation du méthane, et permet ainsi d'optimiser les émissions de CH_4 , CO et H_2 au cours de la même procédure inverse. Les réactions intermédiaires, non prises en compte dans SACS, sont considérées comme très rapides devant les réactions principales. Ce module a été développé par Pison et al. (2009) et permet notamment de sauver des ressources de calcul non négligeables en comparaison avec ce qui serait exploité si un schéma chimique complet était utilisé dans le système inverse. De plus, les capacités du système ne sont pas dégradées puisque Pison et al. (2009) montrent que les différences entre le système simplifié SACS et système complet INCA sont négligeables aux échelles spatiales et temporelles auxquelles nous nous intéressons dans ce travail.

Dans le cadre de ma thèse, et toujours dans le but de gagner du temps de calcul, les réactions concernant CO et H_2 ont été retirées du système puisque mon travail d'inversion portait exclusivement sur l'optimisation des flux de méthane. Finalement, en termes de réactions chimiques sur le méthane, seules les oxydations de CH_4 par OH et $\text{O}(1\text{D})$ sont prises en compte dans le système SACS, négligeant ainsi les interactions de OH avec les autres traceurs et les rétroactions possibles. Par contre, une particularité de PYVAR-LMDz-SACS est d'optimiser les concentrations de OH à partir des concentrations de méthyl-chloroforme (CH_3CCl_3) mesurées à différentes stations de surface autour du globe, comme on l'a décrit dans la partie « Perte chimique par OH » de la section 2.4. Ainsi, on fournit à notre système inverse un champ *a priori* de OH venant d'un modèle de chimie-transport complet (le modèle LMDzORINCA) qui est alors optimisé par les concentrations de méthyl-chloroforme dans la même procédure inverse que pour le méthane. Le champ optimisé de OH ainsi obtenu réagit alors avec le champ de CH_4 comme décrit dans la section 2.1.2 et permet alors d'optimiser parallèlement les flux de méthane.

3.3.3 Le module d'inversion : PYVAR

Le module PYVAR permet de configurer les différents composants de l'inversion (matrices **B** et **R**, état initial, flux *a priori*, mesures de surface, mesures de la colonne totale par satellite, etc.) et de les combiner avec le module de chimie et le module de transport atmosphérique. Finalement, l'optimisation est réalisée dans ce module grâce à la formulation variationnelle du problème inverse exposée en section 3.2.1.2.

Le vecteur d'état comprend les flux de méthane et de méthyl-chloroforme à une résolution spatiale de LMDz (96×96) et une résolution temporelle de 1 semaine. Les conditions initiales de la colonne totale de ces deux composants à chaque point de grille sont également optimisées et comprises dans le vecteur d'état. Un facteur d'échelle des colonnes totales de OH est également optimisé pour 4 bandes de latitudes d'égal volume à une résolution temporelle de 1 semaine.

Les matrices **B** et **R** sont définies selon la méthode décrite dans la section 3.4.4. L'optimisation est itérativement résolue par l'algorithme M1QN3 de Gilbert and Lemaréchal (1989) jusqu'à ce que la norme du gradient de la fonction coût soit réduite de plus de 99%. Cela représente typiquement entre 10 et 20 itérations pour les inversions utilisant comme contraintes des colonnes intégrées et pondérées reconstruites par satellite, et entre 30 et 45 itérations pour les inversions utilisant des contraintes de surface.

3.3.4 En quoi PYVAR-LMDz-SACS diffère-t-il des autres systèmes inverses ?

Premièrement, le système PYVAR-LMDz-SACS diffère des autres systèmes inverses réalisant des estimations des sources et puits de méthane à l'échelle globale par l'approche adoptée : l'approche variationnelle (section 3.2.1.2). A ma connaissance et selon les informations supplémentaires de l'étude de Kirschke et al. (2013), qui détaillent les principaux systèmes inverses utilisées au cours de la dernière décennie, seuls deux autres systèmes (TM5-4DVAR (Bergamaschi et al., 2013) et TM5-4DVAR (Houweling et al., 2014)) estiment les flux de méthane en utilisant une approche variationnelle. Cependant, ces deux systèmes sont très similaires puisqu'ils sont basés sur le même modèle de transport (et le même modèle adjoint). Les autres systèmes réalisant des inversions à l'échelle globale sont basées sur des approches analytiques (LMDz-MIOP (Bousquet et al., 2006), MATCH (Chen and Prinn, 2006)) et des approches ensemblistes (CarbonTracker-CH₄ (Bruhwiler et al., 2011) et GEOS-Chem (Fraser et al., 2011)).

La résolution spatiale et temporelle des estimations des sources et puits de méthane par PYVAR-LMDz-SACS est une autre spécificité de ce système. En effet, il n'existe pas de systèmes estimant les flux de méthane à l'échelle globale à des résolutions plus fine que celle employée dans PYVAR-LMDz-SACS (résolution horizontale : $3.75^\circ \times 2.5^\circ$; résolution temporelle : 8 jours). Les deux autres systèmes inverses (TM5-4DVAR (Bergamaschi et al., 2013) et TM5-4DVAR (Houweling et al., 2014)) utilisant également une méthode variationnelle ont une résolution horizontale de $6^\circ \times 4^\circ$ degrés et une résolution temporelle mensuelle. Cependant, leurs systèmes, comme PYVAR-LMDz-SACS, possèdent une version zoomée qui permet de réaliser des inversions avec une résolution beaucoup plus fine à l'échelle régionale (Carouge et al., 2010; Bergamaschi et al., 2005). Les systèmes basés sur des approches analytiques estiment des flux mensuels pour une dizaine de grandes régions et les systèmes utilisant des méthodes d'ensemble estiment des flux hebdomadaires pour une centaine de régions.

A noter également que PYVAR-LMDz-SACS est le seul système à proposer une optimisation des concentrations de OH, à partir des mesures de concentrations de CH₃CCl₃, parallèlement à l'optimisation des flux de méthane.

3.4 Les composantes des inversions de méthane atmosphérique

On revient ici sur les composantes principales des inversions atmosphériques menées au cours de cette thèse. On détaillera successivement les informations *a priori* sur les sources et puits de méthane, les jeux de données d'observations et les matrices de variance/covariance des erreurs (erreurs d'observation et erreurs sur la connaissance *a priori*).

3.4.1 Connaissance *a priori* des sources de méthane

L'approche généralement utilisée pour déterminer les sources *a priori* d'un gaz atmosphérique est d'utiliser les estimations fournies par un modèle biogéochimique et/ou par des inventaires d'émissions. En ce qui concerne les flux de méthane, les émissions anthropiques sont généralement déterminées par des inventaires basés sur des modèles statistiques ou économiques, tandis que les émissions naturelles sont déterminées par des modèles biogéochimiques adaptés. On énumère ci-dessous les principales sources d'information *a priori* concernant les émissions de méthane.

Emissions anthropiques : l'inventaire EDGAR version 4.2FT2010

Mis à part les feux de biomasse, les émissions anthropiques *a priori* proviennent de l'inventaire EDGAR (Emission Database for Global Atmospheric Research). L'agence chargée du projet EDGAR fournit des bilans passés et présents des émissions anthropiques des gaz à effet de serre (CO_2 , CH_4 , N_2O) et des polluants atmosphériques (CO , PFC,...). En général, la quantité d'un certain gaz émise par une certaine activité est calculée en prenant en compte le facteur d'émission (quantité de polluant émis par unité de grandeur d'une activité), le facteur d'activité (quantité et type de combustibles utilisés par le secteur d'activité) et le type de source (fixe ou mobile ; continue ou variable dans le temps). En considérant ensuite tous les secteurs d'activité, il est alors possible d'obtenir une estimation des émissions anthropiques pour un certain gaz.

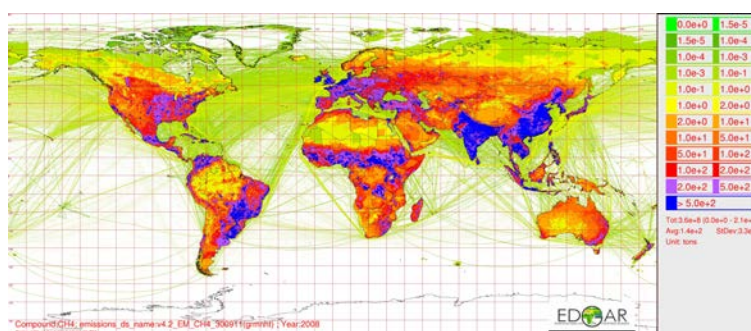


FIGURE 3.3: Emissions anthropiques de méthane en 2008 (unité : tonne de CH_4). Carte issue du site web de EDGAR : <http://edgar.jrc.ec.europa.eu>.

En analysant la figure 3.3 qui présente les émissions anthropiques de méthane pour 2008 répertoriées par EDGAR, on observe de fortes émissions anthropiques en Asie du sud-est (Chine et Inde notamment), en Amérique du Nord, en Europe, et dans une moindre mesure dans quelques pays d'Amérique du Sud et d'Afrique centrale.

Cependant, les types d'émissions anthropiques de méthane dans ces différentes régions peuvent différer grandement. En Inde, les émissions liées à l'agriculture (fermentation entérique) et au traitement des déchets sont importantes. En Chine, la culture du riz et l'exploitation des mines de charbon sont responsables des importantes émissions anthropiques de méthane. En Russie, en Europe Centrale (autour de la mer Caspienne) ou au Moyen-Orient, les émissions de méthane liées à l'extraction et la distribution du gaz naturel prédominent. En Europe et en Amérique du Nord, les émissions anthropiques de méthane sont réparties entre les émissions liées au secteur de l'énergie, à l'agriculture et au traitement des déchets.

Les inversions présentées dans ma thèse ont été réalisées en utilisant la version 4.2FT2010 de EDGAR, mise à disposition du public en Octobre 2013 (<http://edgar.jrc.ec.europa.eu>).

Emissions dues aux feux de biomasse : l'inventaire GFED-v3

Les feux de biomasse sont une source importante de gaz traces atmosphériques et d'aérosols. Il est alors important de prendre en compte ces émissions dans les émissions *a priori*. L'inventaire GFED (Global Fire Emissions Database, www.globalfiredata.org) fournit notamment les émissions de CH₄ dues aux feux de végétation en combinant des informations sur l'activité des feux reconstruite par satellite avec des simulations de la productivité de la végétation à l'aide d'un modèle de surface. Ainsi, les émissions d'un gaz émis par des feux de biomasse sont déduites à partir de l'efficacité de la combustion, de la densité de la biomasse et du facteur d'émission du gaz. La version 3 de GFED ([van der Werf et al., 2010](#)) a été utilisée dans les émissions *a priori* considérées au cours de cette thèse.

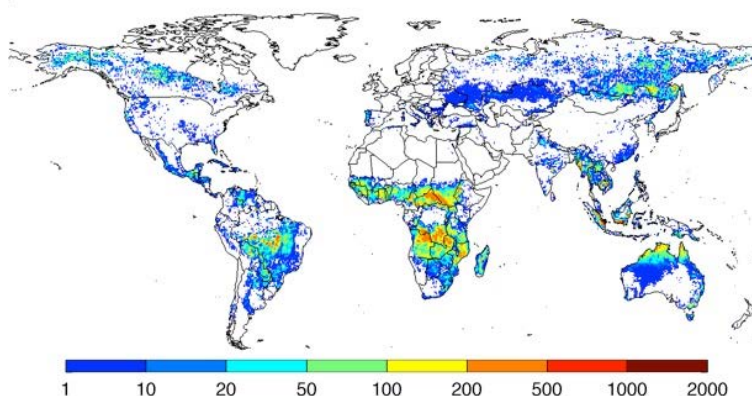


FIGURE 3.4: Emissions annuelles de carbone (unité : $\text{gC.m}^{-2}.\text{year}^{-1}$) moyennées entre 1997 et 2009 dues aux feux de biomasse. Carte issue du site web de GFED : <http://www.globalfiredata.org>.

La figure 3.4 expose la carte mondiale des émissions annuelles de carbone moyennées entre 1997 et 2009 dues aux feux de biomasse. Les régions contribuant le plus à ces émissions sont l'Afrique (52%), l'Amérique du Sud (15%) et l'Asie équatoriale (10%). Les régions boréales ne contribuent que pour 9% des émissions mondiales de carbone par les feux de biomasse. Lorsqu'on s'intéresse aux émissions par les feux de biomasse de méthane en particulier, la proportion de la contribution des différentes régions varient légèrement. En effet, les feux de forêts ou de tourbières émettent de plus grande quantité de méthane dans l'atmosphère que les feux de végétation plus herbeuses (végétation de savane par exemple). Ainsi, la contribution de l'Afrique

aux émissions de méthane par les feux passent de 52% à 36% des émissions totales, compensée notamment par une augmentation de la contribution de l'Asie équatoriale (van der Werf et al., 2010).

Emissions naturelles

Les émissions de méthane d'origines naturelles contribuent fortement aux émissions totales de méthane (voir chapitre 2). Les émissions par les zones humides constituent une grande partie de ces émissions naturelles et il est essentiel de les considérer dans les émissions *a priori*. Dans cette thèse, c'est le travail de Kaplan dans Bergamaschi et al. (2007) qui a été utilisé comme information *a priori* des émissions de méthane par les zones humides. En effet, Kaplan a agrégé de nouvelles cartes bénéficiant d'une classification de l'occupation des sols à haute résolution pour différentes régions du monde et le modèle de végétation, LPJ DGVM (Lund-Postdam-Jena Dynamic Global Vegetation Model), a été utilisé pour obtenir les émissions de méthane par ces zones humides. Une description de la méthode menant à l'élaboration de cette carte mondiale des zones humides est disponible dans Bergamaschi et al. (2007).

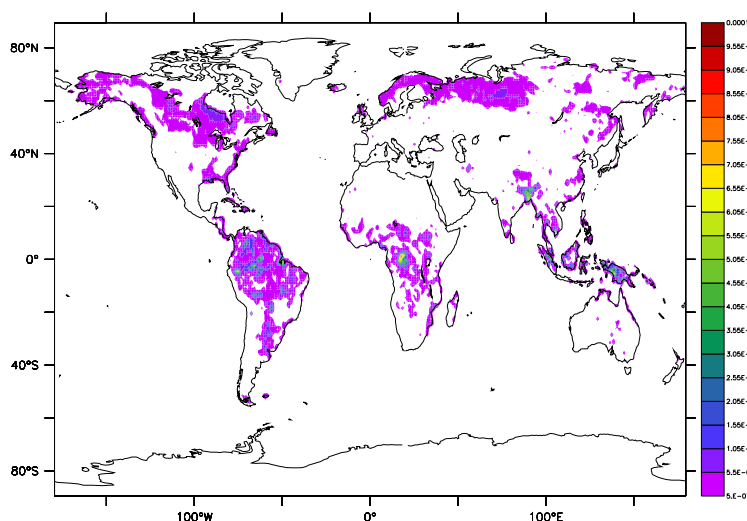


FIGURE 3.5: Emissions de méthane (en tonnes de CH_4 par m^2 et par an) par les zones humides selon le travail de Kaplan dans Bergamaschi et al. (2007).

La figure 3.5 montre cette carte mondiale des émissions annuelles de méthane relatives aux zones humides. On remarque que les émissions sont plus importantes dans les tropiques : autour du bassin de l'Amazonie, du fleuve Congo et en Indonésie. De fortes émissions sont également localisées dans les régions boréales : en Amérique du Nord et à l'est, et au centre de la Sibérie.

D'autres émissions naturelles sont également considérées dans les émissions *a priori* utilisées au cours de cette thèse. A partir du travail de Sanderson (1996), on considère que les émissions de méthane par les termites atteignent 19 TgCH_4 par an. La contribution des océans aux émissions de méthane globale s'élève à 17 TgCH_4 par an selon le travail de Lambert and Schmidt (1993).

Cependant, d'autres émissions naturelles de méthane (comme les sources géologiques ou les eaux continentales), qui ont été décrites dans la section 2.2.1, ne sont pas explicitement prises en compte dans les émissions *a priori*. En effet, les incertitudes

liées à ces sources mineures de méthane dans l'atmosphère sont très importantes et il n'en existe pas de cartes fiables. Cependant, le système inverse utilisé pourra retrouver ces émissions à partir des mesures de concentrations atmosphériques, mais les contributions de ces émissions seront alors incluses dans d'autres catégories d'émissions.

3.4.2 Connaissance *a priori* du puits chimique

Le puits chimique est un élément essentiel pour expliquer les concentrations atmosphériques de méthane (section 2.2.3). La moyenne zonale du champ de concentration atmosphérique annuelle de OH, qui explique plus de 90% du puits total de CH₄, est présenté sur la figure 3.6. Ce champ, utilisé comme *a priori* dans les inversions présentées au cours de ce travail, provient d'une simulation climatique utilisant le modèle de chimie-complet LMDzORINCA (Szopa et al., 2013).

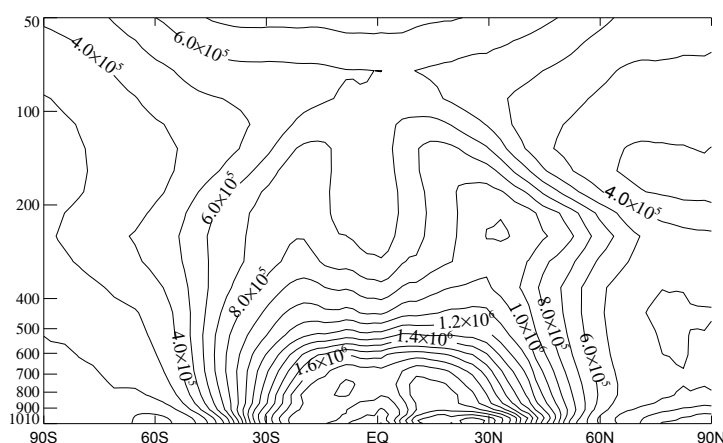


FIGURE 3.6: Moyenne zonale de la concentration annuelle (en molécules.cm⁻³) du radical hydroxyle, OH, entre 1010 et 50 hPa. Les contours sont tracés tous les 10⁵ molécules.cm⁻³.

On remarque sur cette figure que les concentrations de OH sont plus fortes dans les tropiques en milieu et basse troposphère, avec un maximum de 21×10^5 molécules.cm⁻³ autour de 800 hPa. La distribution de la concentration de OH est quasiment symétrique par rapport à l'équateur, même si les concentrations dans l'hémisphère nord sont légèrement supérieures. La moyenne globale de la concentration de OH entre la surface et 100 hPa est de 11.5×10^5 molécules.cm⁻³. Les différentes caractéristiques présentées ici sont comprises dans les intervalles de confiance des connaissances actuelles de la distribution atmosphérique de OH (Naik et al., 2013; Lawrence et al., 2001).

3.4.3 Les données d'observation

Les jeux de données d'observation sont également un élément clé des inversions atmosphériques puisque ce sont les contraintes principales du problème inverse. En effet, le système optimise les flux en réponse à ces observations. Les mesures de la concentration de méthane en surface et, depuis quelques années seulement, les colonnes pondérées de méthane reconstruites à partir d'observation satellites de luminances dans l'infrarouge sont les principales données disponibles qui permettent de

contraindre le système inverse.

Les stations de surface

Les mesures des concentrations de gaz à effet de serre ont débuté en 1958 par la mesure du CO₂ à Mauna Loa (Hawaï, USA) à l'initiative de C. D. Keeling (Keeling, 1960). Un réseau de mesures s'est peu à peu développé autour du monde et a été étendu aux autres gaz à effet de serre, dont le méthane, à partir de 1978 (Blake et al., 1982; Dlugokencky et al., 1994). Le méthane est aujourd'hui mesuré dans l'atmosphère de façon régulière par de nombreux réseaux en plus de 150 points répartis sur la surface du globe (figure 3.7).

Les mesures de surface regroupent :

- les mesures par « flacons » : des flacons d'air sont prélevés et la concentration du gaz est mesurée en laboratoire
- les mesures en continu en surface : elles peuvent être réalisées à hautes fréquences (0.1-10 Hz) par des instruments automatiques puis généralement converties en moyennes horaires
- les mesures sur des hautes tours (100-400m) : on mesure ainsi la concentration à différentes altitudes entre la surface et le sommet de la tour à l'aide d'analyseurs automatiques
- les mesures aéroportées : elles sont effectuées par de petits avions privés dans la couche limite atmosphérique ou bien par des avions commerciaux (Schuck et al., 2012)

La figure 3.7 distingue les nombreux réseaux de mesures. Le réseau de NOAA/ESRL (USA) est le plus ancien et le plus étendu. Le réseau AGAGE (Advanced Global Atmospheric Gases Experiment) mesure les concentrations de gaz à effet de serre de manière continue depuis le début des années 80. D'autres réseaux financés par différents pays se sont également développés : le réseau du LSCE en France, NIES au Japon, etc. De nombreuses données issues de ces réseaux sont utilisées dans cette thèse.

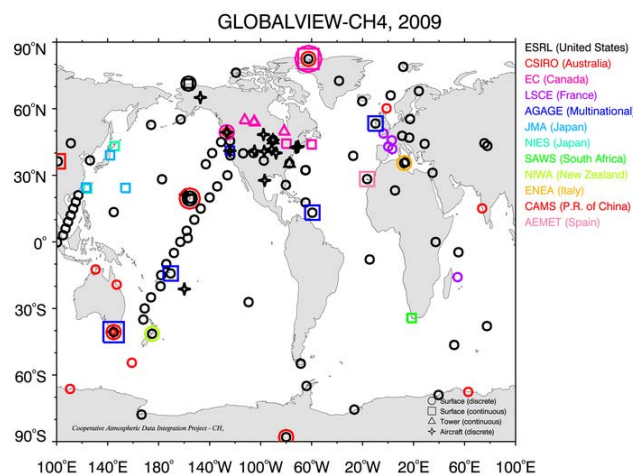


FIGURE 3.7: Carte mondiale de la localisation des stations de surface (flacons (cercle) et continues (carré)), des tours (triangle) et des mesures aéroportées (croix). Les différentes couleurs représentent le réseau qui effectue les mesures. (www.esrl.noaa.gov/gmd/ccgg/globalview/ch4/ch4_sites.html)

Toutefois, il apparaît clairement que de larges zones, pourtant très importantes pour la compréhension du cycle du méthane, restent non échantillonnées. C'est le cas,

de manière générale, des régions de l'hémisphère sud et notamment des régions tropicales (Afrique et Amérique du Sud). D'autres régions de l'hémisphère nord, comme la Sibérie, sont également peu échantillonnées.

Les données satellites

Les premières reconstructions de colonnes pondérées et intégrées de méthane à partir d'une mesure de rayonnement par satellite ont vu le jour en 2005 (Buchwitz et al., 2005; Frankenberg et al., 2005) après l'exploitation des mesures fournies par le spectromètre SCIAMACHY, installé à bord de la plateforme ENVISAT lancé en 2002. D'autres projets satellites ont alors suivi le lancement de ENVISAT pour l'étude de la composition de l'atmosphère. L'interféromètre atmosphérique de sondage infrarouge (IASI) sur le satellite METOP-A et le spectromètre à transformée de Fourier TANSO sur le satellite GOSAT ont été mis, respectivement, en orbite en 2006 et 2009. Le Tableau 3.1 donne quelques caractéristiques importantes de ces instruments à bord de satellites mesurant la colonne totale de méthane. On remarque notamment que les erreurs associées aux mesures des instruments lancés récemment (GOSAT et IASI) ont été nettement améliorées en comparaison avec les caractéristiques de SCIAMACHY.

TABLE 3.1: Caractéristiques des trois satellites (SCIAMACHY, GOSAT et IASI) fournissant des mesures de la colonne totale de méthane.

	SCIAMACHY	GOSAT	IASI
Statut	Terminé	En vol	En vol
Agence	DLR/NSO/ESA	JAXA	CNES/EUMETSAT
Date de lancement	2002	2009	2006
Fin de mission	2012	-	-
Gamme de longueur d'onde	SWIR ¹	SWIR ¹	TIR ²
Temps de revisite (jours)	6	3	1
Fauchée (km ²)	30x60	10x10	25x25
Erreur aléatoire (ppb)	30-80	15	12
Erreur aléatoire (%)	1.5-4	1	0.8
Erreur systématique (ppb)	5-20	3-8	18
Erreur systématique (%)	0.3-1.1	0.1-0.4	1

1 : Short Wave Infrared Radiation. 2 : Thermal Infrared Radiation.

La figure 3.8 donne une représentation des colonnes totales mesurées par SCIAMACHY moyennée sur la période 2002-2011 (à droite) et par GOSAT moyennée sur la période 2010-2011 (à gauche). Contrairement aux mesures de surface, les mesures de méthane depuis l'espace fournissent des données plus régulièrement réparties et permet d'observer des régions pas ou peu échantillonnées jusqu'à maintenant par les réseaux de surface.

Seules les données provenant du satellite GOSAT ont été utilisées dans les inversions atmosphériques présentées dans ce travail. En effet, les erreurs importantes et la nécessité de corriger les biais des colonnes totales reconstruites par SCIAMACHY constituent une limitation importante à l'utilisation des données de SCIAMACHY (Cressot et al., 2014; Houweling et al., 2014; Bergamaschi et al., 2013). La gamme de longueur d'onde utilisée par IASI le rend plus sensible au milieu de la troposphère, ce qui est également limitant lorsqu'on cherche à estimer des émissions ayant lieu à la surface. Ces différentes raisons font que seules les données fournies par GOSAT ont été utilisées dans ces travaux.

D'autres techniques de mesures permettent également de fournir des informations

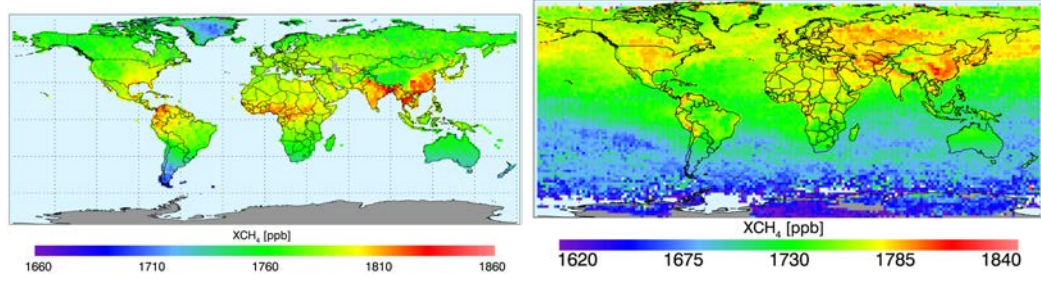


FIGURE 3.8: Carte mondiale des colonnes intégrées de méthane (en ppb) moyennées sur la période 2002-2011 pour SCIAMACHY (figure de droite) à bord d'ENVISAT (www.iup.uni-bremen.de/sciamachy) et pour GOSAT sur la période 2010-2011 (figure de gauche).

importantes sur la connaissance des concentrations de méthane. C'est notamment le cas du réseau TCCON ([Wunch et al., 2010](#)) qui utilise des techniques de télédétection depuis le sol (spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier) pour calculer des colonnes pondérées et intégrées de méthane. De plus, des projets de télédétection active se profilent dans un futur proche, à base de la technologie LIDAR (Light Detection And Ranging). En effet, le projet franco-allemand MERLIN prévoit d'utiliser un LIDAR pour reconstruire des colonnes intégrées de méthane depuis l'espace à partir de 2019. En comparaison avec les mesures satellites passives, cette technique permettra de reconstruire des profils de méthane même aux hautes latitudes et les biais liés à ces mesures devraient être plus faibles que ceux inhérents aux mesures d'instruments passifs ([Kiemle et al., 2011](#)).

3.4.4 Les matrices de variance/covariance des erreurs

La matrice **B** de variance/covariance des erreurs *a priori*

La matrice de variance/covariance **B** caractérise les erreurs sur les flux *a priori*. Les variances d'erreur sur les flux (termes diagonaux de **B**) quantifient la confiance que l'on donne dans la connaissance *a priori* des flux. De fortes variances indiquent que les flux *a priori* sont incertains et que la recherche des flux optimisés peut se faire loin des valeurs prescrites.

Les corrélations (termes non-diagonaux de **B**) spatiales, r , entre deux flux x_i et x_j sont calculées en utilisant la formule décrite par [Rödenbeck et al. \(2003\)](#). Cette relation prescrit des corrélations selon une décroissance exponentielle en fonction de la distance, D , entre les deux points et d'une longueur de corrélation, L .

$$r(x_i, x_j) = \exp \left[-\frac{D(x_i, x_j)}{L} \right]$$

Dans PYVAR, les longueurs de corrélation sont de l'ordre de 500 km sur les continents et de 1000 km sur les océans, traduisant une plus grande homogénéité du milieu océanique par rapport au milieu continental. Les valeurs des variances (termes diagonaux de **B**) sont calculées à chaque point de grille comme 70% du carré du maximum des émissions *a priori* des huit cellules voisines selon la méthode présentée dans [Chevallier et al. \(2005\)](#). Une fois intégrées variances et covariances, l'erreur typique annuelle du flux *a priori* de méthane est de $50 \text{ TgCH}_4 \cdot \text{an}^{-1}$.

La matrice **R** de variance/covariance des erreurs d'observation

Théoriquement, la matrice **R** de variance/covariance des erreurs d'observation contient

l'ensemble des erreurs qui contribuent à une différence entre les concentrations mesurées et simulées. L'équation 3.14 présente la décomposition de la matrice \mathbf{R} en ces différentes contributions. On distingue généralement deux grandes contributions aux erreurs de la matrice \mathbf{R} : les erreurs de mesures, $\mathbf{R}_{\text{mesures}}$, et les erreurs de modélisation, $\mathbf{R}_{\text{modélisation}}$.

$$\mathbf{R} = \mathbf{R}_{\text{mesures}} + \mathbf{R}_{\text{modélisation}} \quad (3.14)$$

$$= \mathbf{R}_{\text{mesures}} + \mathbf{R}_{\text{représentativité}} + \mathbf{R}_{\text{forçage}} + \mathbf{R}_{\text{transport}} \quad (3.15)$$

Les erreurs de mesures prennent en compte les erreurs instrumentales potentielles. Elles quantifient l'écart qui existe entre la concentration mesurée et la « vraie » concentration. La précision instrumentale des mesures de CH_4 de surface est excellente et typiquement comprise entre 1 et 4 ppb (Cunnold et al., 2002). Plus récemment, Bergamaschi et al. (2005) ont considéré une erreur instrumentale de 3 ppb pour les mesures faites aux stations de surface utilisées dans leurs inversions. Dans nos inversions, nous avons également considéré une erreur instrumentale de 3 ppb. Cette contribution est intégrée dans la matrice $\mathbf{R}_{\text{mesures}}$ de la décomposition de la matrice totale, \mathbf{R} .

Les erreurs de modélisation regroupent l'ensemble des erreurs liées à la modélisation qui mènent à des écarts entre les concentrations simulées et les « vraies » concentrations. En premier lieu, ces erreurs comprennent les erreurs de « représentativité », contenues dans $\mathbf{R}_{\text{représentativité}}$, c'est-à-dire l'incapacité d'un modèle à reproduire une observation ponctuelle. Un exemple classique d'erreur de représentativité est le fait qu'un modèle simule la concentration moyenne d'une « boîte » ayant un volume important ($200\text{km} \times 200\text{km} \times 100\text{m}$), alors que la mesure a lieu spatialement et temporellement en un point précis. Les erreurs d'aggrégation décrites par Kaminski et al. (2001) sont également comprises dans les erreurs de représentativité : plus on aggrège spatialement et temporellement les flux avant inversion, moins on est capable de représenter la diversité spatiale et temporelle des flux « vrais ». Kaminski et al. (2001) ont mis en évidence que la contribution de l'erreur d'aggrégation à l'écart-type total de la matrice \mathbf{R} pouvait atteindre jusqu'à 3.5 ppm dans les inversions analytiques de CO_2 , soit de l'ordre du gradient inter-hémisphérique du CO_2 . Dans l'approche utilisée dans cette thèse, on résout les flux à une échelle spatiale relativement fine et à une échelle hebdomadaire, ce qui représente une amélioration vis à vis de l'erreur d'aggrégation par rapport aux échelles mensuelles généralement utilisées.

En second lieu, les erreurs liées à une mauvaise représentation du transport atmosphérique par le modèle de chimie-transport doivent être prises en compte. Les principales sources d'incertitudes du transport atmosphérique sont la représentation de la convection, du mélange dans la couche limite et de l'advection. Ces erreurs sont incluses dans la matrice $\mathbf{R}_{\text{transport}}$. De plus, les forçages météorologiques fournis par des centres météorologiques pilotent, de manière plus ou moins forte, le transport atmosphérique. Ainsi, toutes les erreurs incluses dans les forçages météorologiques ($\mathbf{R}_{\text{forçage}}$) peuvent également se répercuter sur l'estimation des flux. L'article Locatelli et al. (2013) exposé en section 4.3 revient très largement sur la contribution de ces deux dernières sources d'erreurs et quantifie leurs impacts sur les estimations des flux de méthane pour les inversions des années 2000. On reviendra notamment sur les différentes approches qui existent pour calculer ces différentes erreurs et on présentera également quelques études qui proposent de nouvelles alternatives.

Dans nos inversions, on utilise l'écart-type résiduel des mesures à une courbe polynomiale lissant ces mesures calculé à chaque station comme proxy des erreurs de modélisations incluses dans la matrice \mathbf{R} .

Il est à noter que les corrélations d'erreurs dans l'espace des observations ne sont pas prises en compte dans les inversions atmosphériques pour les gaz à effet de serre par manque de connaissances pour les évaluer. Cependant, quelques travaux ont proposé des idées sur ce sujet. Par exemple, [Chevallier et al. \(2007\)](#) ont montré qu'augmenter artificiellement les variances revenait à limiter l'impact de la non-considération des corrélations tout en bénéficiant d'un temps de calcul raisonnable. Dans notre cas, les corrélations d'erreurs de la matrice \mathbf{R} ne sont pas prises en compte.

3.5 Les limitations de la modélisation inverse

Les inversions atmosphériques ont démontré, depuis leur développement dans les années 90, leur capacité à apporter des contraintes sur les cycles biogéochimiques du système Terre-Océan-Atmosphère. Cependant, un certain nombre de limitations sont apparues avec le développement de ces techniques. On expose ici les principales limitations des inversions atmosphériques : les ressources de calcul, le manque de données et les erreurs de modélisation.

Tout d'abord, il a été vu que les inversions atmosphériques reposent sur des méthodes numériques lourdes (inversions de matrices, méthodes de minimisation, etc.) et mettant en jeu des systèmes de grandes dimensions (nombre important de contraintes (données satellites, mesures de surface, etc), optimisation de plusieurs espèces chimiques à la fois (CH_4 et MCF)). Par conséquent, les ressources de calculs disponibles sont une limitation importante des inversions atmosphériques actuelles. De plus, bien que les ressources de calcul aient largement augmenté au cours des dernières années, le développement de systèmes inverses plus précis mais toujours plus complexes requiert davantage de ressources de calcul. La configuration mise en place et utilisée au cours de cette thèse nécessite plusieurs semaines de calculs pour obtenir une optimisation des flux de surface pour une seule année et avec une convergence satisfaisante (voir section 6.1.3 décrivant les performances du système inverse).

Ensuite, le manque de contraintes pour permettre de retrouver les sources et puits de méthane avec une bonne fiabilité a été une limitation qui est apparue très rapidement lorsque les méthodes inverses ont commencé à se développer. En effet, de grandes zones de la surface terrestre restent des « déserts » de mesures de la concentration de méthane et il est alors très compliqué d'optimiser les flux de ces régions sans contraintes. Cette limitation s'est comblée en partie avec le développement des réseaux de surface et de basse atmosphère, mais la situation reste tout de même fragile à moyen et long terme ([Houweling et al., 2012](#)). Par ailleurs, la mise en orbites de satellites mesurant les gaz à effet de serre permet en théorie de lever partiellement cette limitation mais, comme nous le verrons dans la section 6.3.2.3, pose aussi d'autres problèmes (les erreurs aléatoires et les biais de ces données sont plus grands).

Finalement, l'une des grandes limitations de la modélisation inverse reste les nombreuses sources d'erreurs, notamment systématiques, dans la représentation du transport atmosphérique des gaz par un modèle numérique. Il est d'autant plus important d'être conscient de cette limitation que la modélisation inverse est particulièrement sensible à toutes les erreurs systématiques. En effet, une difficulté majeure des inversions atmosphériques réside, comme le montre la figure 3.9, dans l'interprétation des signaux des concentrations atmosphériques mesurées qui sont le résultat du transport atmosphérique (diffusion turbulente, advection, convection, etc) du méthane émis par différentes sources. Dans le « monde réel », l'information sur la localisation et l'intensité de la source sont petit à petit disséminées et diffusées dans l'atmosphère suite aux divers processus physiques de transport et de mélange. A travers la procédure inverse et grâce à l'apport de la modélisation numérique, on cherche alors à amplifier les signaux

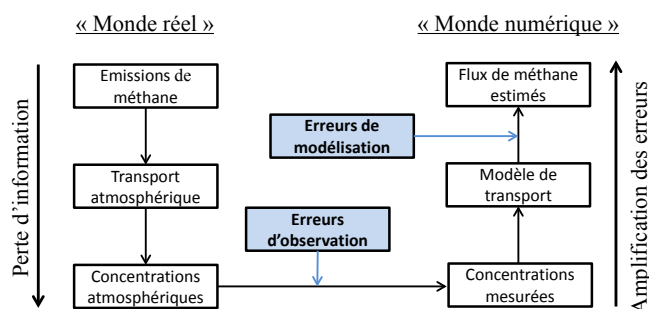


FIGURE 3.9: Schéma adapté de la figure 1.3 du Livre de I. Enting : « Inverse Problems in Atmospheric Constituent Transport ». Représentation schématique de l'impact des erreurs (erreurs de modélisation, erreurs d'observation) sur les concentrations atmosphériques dans un « monde réel » et sur l'estimation des flux dans un « monde numérique ».

mesurés dans les concentrations pour retrouver l'information sur les flux. Mais cette étape peut aussi mener à l'amplification des différentes erreurs (et notamment des erreurs de modélisation) pour finalement aboutir à une estimation erronée des flux. Les erreurs instrumentales sont généralement assez bien connues, mais ce n'est pas le cas des erreurs liées à la modélisation numérique du transport atmosphérique.

Les modèles de chimie-transport se sont développés parallèlement au développement des réseaux de stations de surface mesurant la concentration de gaz à effet de serre dans l'atmosphère. A l'origine les mesures faites à ces stations ont permis de déterminer les concentrations de fond des gaz à effet de serre puisqu'elles étaient situées loin de toutes sources majeures de gaz à effet de serre. Par exemple, les premières stations installées dans le réseau AGAGE étaient situées à Cape Matatula (Les Samoa), Cape Grim (Australie), Ragged Point (La Barbade) et Adrigole (Irlande). La validation des modèles de chimie-transport a donc été majoritairement basée sur ces mesures de gaz atmosphériques échantillonnant la concentration « de fond » des gaz traces. La représentation des concentrations atmosphériques à ces stations isolées dépend majoritairement d'une bonne modélisation du transport atmosphérique de grande échelle. Or, aujourd'hui, l'inversion atmosphérique cherche à mieux connaître la localisation des zones de fortes émissions de méthane. Ainsi, de plus en plus de stations de mesures sont installées proches de ces zones pour bénéficier d'informations précieuses sur les émissions. De plus, avec l'apparition de nouvelles contraintes comme les données satellites, d'autres aptitudes des modèles de chimie-transport (par exemple, la distribution verticale de la concentration) sont aujourd'hui nettement plus sollicitées. Ainsi, la majorité des modèles développés dans les années 90 pour représenter les concentrations « de fond » ont aujourd'hui beaucoup de difficultés à reproduire fidèlement les observations récentes. Par conséquent, les erreurs liées à la représentation des processus de transport dans ces régions où les émissions sont fortes peuvent être très importantes. On a illustré cela dans la partie introductive (section 1.3) en montrant la série temporelle de la concentration de méthane à Gosan (Corée du Sud) simulée par différents modèles. Il est flagrant que la dispersion entre les modèles pour simuler la concentration de méthane est très grande (plusieurs dizaines de ppb). Aujourd'hui, une meilleure représentation de la variabilité des concentrations atmosphériques est devenue essentielle pour pouvoir utiliser à bon escient des mesures de concentrations atmosphériques faites par des stations localisées plus proches des sources d'émissions et/ou par des satellites dans les systèmes inverses.

Conclusions du chapitre

Ce chapitre a permis de se familiariser avec les principes théoriques de la modélisation inverse à travers un exemple simple à deux dimensions et une présentation des contraintes qui accompagnent l'utilisation des systèmes inverses en sciences atmosphériques. Le système inverse du LSCE a été décrit en détaillant les trois modules principaux le constituant :

- le modèle de chimie simplifié, SACS
- la version « offline » de LMDz pour simuler le transport atmosphérique
- le module d'inversion, PYVAR

Ce système s'appuie également sur différentes composantes (information *a priori*, données atmosphériques, matrices d'erreurs, etc.) dont la prise en compte fait apparaître plusieurs limitations. L'une des limitations majeures de la modélisation inverse est associée aux erreurs liées à la représentation du transport atmosphérique par le modèle de chimie-transport.

S'appuyant sur ces constats, une large partie de ma thèse a été consacrée au rôle de la modélisation des concentrations atmosphériques de gaz traces par le modèle global LMDz sur les inversions de méthane atmosphérique par PYVAR. Avant de chercher à comprendre et diminuer les erreurs de modélisation (chapitre 5) afin d'améliorer le bilan mondial du méthane (chapitre 6), on présente, dans le chapitre suivant, une étude visant à quantifier l'impact des erreurs de transport sur les inversions de sources et puits de méthane au cours des années 2000. Cela nous permet alors de quantifier plus précisément le degré de confiance que l'on peut accorder aux estimations des sources et puits de méthane aux échelles planétaire et régionales vis-à-vis des erreurs de transport.

Impact de l'erreur transport sur les inversions de méthane des années 2000

LE MODÈLE de chimie-transport est un élément fondamental des systèmes inverses car il permet de relier l'espace des flux à l'espace des concentrations. Cependant, une mauvaise représentation du transport atmosphérique engendre une estimation erronée des flux de méthane. Malheureusement, il n'existait pas, au début de ma thèse et à notre connaissance, d'études quantifiant l'impact des erreurs de transport sur les flux de méthane optimisés par modélisation inverse. Dans ce chapitre, on propose alors une expérience visant à quantifier la confiance que l'on peut accorder dans les flux de méthane relativement aux incertitudes existant sur la modélisation du transport atmosphérique.

Les résultats de ce chapitre ont fait l'objet d'une publication dans le journal *Atmospheric, Chemistry and Physics* : "Impact of transport model errors on the global and regional methane emissions estimated by inverse modelling" en juin 2013, qui est citée comme [Locatelli et al. \(2013\)](#) dans ce manuscrit. La présentation générale de l'étude est exposée dans la section 4.1 tandis que les principaux résultats sont résumés dans la section 4.2. L'intégralité de la publication est exposée en section 4.3. On présente également des études complémentaires à cette publication dans la section 4.4.

4.1 Objectifs de l'étude

Cette étude propose de quantifier l'impact des erreurs de modélisation du transport atmosphérique sur les estimations des sources et puits de méthane par modélisation inverse pour les années 2000.

L'impact des erreurs de modélisation sur les inversions atmosphériques est quantifié à partir d'une intercomparaison de différentes inversions utilisant le système variationnel PYVAR-LMDz-SACS et différents jeux de pseudo-observations de concentrations de surface. Ces jeux de pseudo-observations ont été créés à partir de simulations de différents modèles de chimie-transport, effectuées selon un protocole identique, caractérisant ainsi la diversité des modèles existant dans la communauté internationale ([Patra et al., 2011](#)).

En conséquence, les écarts entre les pseudo-observations et les concentrations simulées à différentes stations de surface par LMDz-SACS sont représentatifs des différences de modélisation du transport entre LMDz-SACS et les différents modèles de chimie-transport. Les différentes inversions utilisant ces pseudo-observations comme contraintes permettent alors de quantifier, dans les émissions *a posteriori*, l'impact des

erreurs de modélisation sur les inversions.

Les différentes inversions ont été menées en utilisant rigoureusement les mêmes composants (erreurs *a priori*, erreurs d'observation, corrélation spatiale des flux *a priori*, condition initiale, émission *a priori*, puits chimique) du système inverse. Seul le jeu de pseudo-observations utilisé distingue chacune des différentes inversions. A noter également que les différentes simulations utilisées pour créer les pseudo-observations ont été réalisées en utilisant le même flux qui est également utilisé comme *a priori* dans nos inversions. On parle alors de flux « target » puisque dans le cadre de notre expérience utilisant des pseudo-observations on connaît alors le flux vrai vers lequel devraient converger les inversions si les erreurs de modélisation n'avaient aucun impact.

4.2 Principaux résultats

4.2.1 Erreurs liées à la modélisation du transport à l'échelle mondiale, régionale et locale

Selon le protocole d'intercomparaison mis en place dans cette étude, il est montré que les estimés des émissions de méthane à l'échelle globale sont compris dans une fourchette allant de 523 à 550 TgCH₄ pour l'année 2005. Ainsi, il est évalué que les erreurs liées à la modélisation du transport peuvent causer jusqu'à 27 TgCH₄ d'erreur (soit 5% des émissions annuelles de méthane) dans les estimations des émissions de méthane à l'échelle globale.

A l'échelle continentale, les écarts entre les estimations sont encore plus importants relativement aux émissions des continents. En Europe, les erreurs de transport sont responsables d'une incertitude de 16 TgCH₄.an⁻¹ (23% des émissions de l'Europe), tandis qu'en Amérique du Sud l'incertitude atteint 35 TgCH₄.an⁻¹ (48%). A l'échelle de la résolution du modèle, les écarts entre les différentes inversions deviennent encore plus significatifs : ils peuvent atteindre 150% à certains points de grille, montrant ainsi que les inversions ne sont même pas en cohérence sur le signe de l'incrément à appliquer à l'émission *a priori*.

4.2.2 Echanges inter-hémisphériques et variabilité synoptique

L'analyse de la représentation des échanges inter-hémisphériques et de la variabilité synoptique par les modèles de transport montre que ces deux diagnostics de la modélisation du transport atmosphérique peuvent expliquer relativement bien les différences trouvées dans les émissions estimées par modélisation inverse.

Les anomalies trouvées dans les émissions hémisphériques sont fortement liées aux caractéristiques des échanges inter-hémisphériques. On remarque notamment que les inversions utilisant des modèles simulant des échanges inter-hémisphériques rapides estiment des émissions plus importantes dans l'hémisphère nord (et des émissions plus faibles dans l'hémisphère sud) qu'une inversion utilisant un modèle caractérisé par un temps d'échange inter-hémisphérique long. L'amplitude du cycle saisonnier des flux estimés est aussi fortement liée à la manière dont les échanges entre hémisphères sont représentés.

A l'échelle continentale, il est montré que la représentation de la variabilité synoptique peut avoir un impact non négligeable sur les estimations par modélisation inverse. L'exemple de deux modèles extrêmes dans leur manière de représenter la variabilité synoptique (PCTM et TOMCAT) illustre le fait que lorsque la variabilité synoptique

modélisée est surestimée (ou sous-estimée) comparée aux observations, l'inversion sous-estime (ou surestime) les flux de méthane. Ceci apparaît très clairement dans les régions où les flux de méthane sont importants et où un nombre suffisant de contraintes est disponible (c'est le cas par exemple de l'Amérique du Nord et de l'Europe).

4.2.3 Sensibilité au réseau de mesures et quantification des erreurs d'observation

La sensibilité des résultats aux réseaux des pseudo-observations de surface a également été testée. Les inversions de référence ont été réalisées en utilisant un réseau de 166 stations continues (réseau NET1). Dans le réseau NET2, 40 stations continues combinées à 120 stations "flacons" ont été utilisées. Le réseau NET3 est identique au réseau NET2 à lequel des mesures aéroportées et de hautes-tours ont été ajoutées. De manière générale, on retrouve des résultats très similaires sur l'amplitude de l'impact de l'erreur transport sur les inversions dans les trois configurations du réseau. Cependant, ces tests de sensibilité nous ont permis de mettre en évidence que les erreurs d'observations utilisées dans les inversions actuelles étaient très souvent sous-estimées. En effet, en considérant que les erreurs d'observation décrivent correctement les écarts entre les concentrations mesurées et les concentrations simulées, on pourrait s'attendre à ce que les inversions soient plus proches du flux « target » dans le cas du réseau NET1 puisqu'un nombre plus important de mesures contraignent le système. Cependant, il a été vu qu'au contraire les inversions contraintes par les données NET1 s'éloignaient du flux « target ». Cette constatation peut être expliquée, en grande partie, par la sous-estimation des erreurs d'observation qui exacerbent les erreurs de transport, ce qui « éloigne » le flux optimisé du flux « target ».

Une comparaison des erreurs utilisées dans d'autres inversions atmosphériques a également montré que les erreurs utilisées dans notre étude sont proches de ce qui est utilisé dans d'autres études, montrant que les conclusions sur la sous-estimation des erreurs d'observation ne se limite pas à notre seule étude.

4.3 Publication : « Impact of transport model errors on the global and regional methane emissions estimated by inverse modelling »



Impact of transport model errors on the global and regional methane emissions estimated by inverse modelling

R. Locatelli¹, P. Bousquet¹, F. Chevallier¹, A. Fortems-Cheney¹, S. Szopa¹, M. Saunois¹, A. Agusti-Panareda², D. Bergmann³, H. Bian⁴, P. Cameron-Smith³, M. P. Chipperfield⁵, E. Gloor⁵, S. Houweling^{6,7}, S. R. Kawa⁴, M. Krol^{6,7,8}, P. K. Patra⁹, R. G. Prinn¹⁰, M. Rigby^{11,10}, R. Saito⁹, and C. Wilson⁵

¹Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, LSCE – UMR8212, Gif sur Yvette, France

²European Centre for Medium-Range Weather Forecasts, Shinfield Park, Reading, Berkshire, RG2 9AX, UK

³Atmospheric, Earth, and Energy Division, Lawrence Livermore National Laboratory, 7000 East Avenue, Livermore, CA 94550, USA

⁴Goddard Earth Sciences and Technology Center, NASA Goddard Space Flight Center, Code 613.3, Greenbelt, MD 20771, USA

⁵Institute for Climate and Atmospheric Science, School of Earth and Environment, University of Leeds, Leeds, LS2 9JT, UK

⁶SRON Netherlands Institute for Space Research, Sorbonnelaan 2, 3584 CA Utrecht, the Netherlands

⁷Institute for Marine and Atmospheric Research Utrecht (IMAU), Princetonplein 5, 3584 CC Utrecht, the Netherlands

⁸Wageningen University and Research Centre, Droevendaalsesteeg 4, 6708 PB Wageningen, the Netherlands

⁹Research Institute for Global Change/JAMSTEC, 3173-25 Show-machi, Yokohama, 2360001, Japan

¹⁰Center for Global Change Science, Building 54, Massachusetts Institute of Technology, Cambridge, MA 02139, USA

¹¹School of Chemistry, University of Bristol, Bristol, BS8 1TS, UK

Correspondence to: R. Locatelli (robin.locatelli@lsce.ipsl.fr)

Received: 25 March 2013 – Published in Atmos. Chem. Phys. Discuss.: 24 April 2013

Revised: 19 August 2013 – Accepted: 22 August 2013 – Published: 8 October 2013

Abstract. A modelling experiment has been conceived to assess the impact of transport model errors on methane emissions estimated in an atmospheric inversion system. Synthetic methane observations, obtained from 10 different model outputs from the international TransCom-CH₄ model inter-comparison exercise, are combined with a prior scenario of methane emissions and sinks, and integrated into the three-component PYVAR-LMDZ-SACS (PYthon VARIational-Laboratoire de Météorologie Dynamique model with Zooming capability-Simplifie Atmospheric Chemistry System) inversion system to produce 10 different methane emission estimates at the global scale for the year 2005. The same methane sinks, emissions and initial conditions have been applied to produce the 10 synthetic observation datasets. The same inversion set-up (statistical errors, prior emissions, inverse procedure) is then applied to derive flux estimates by inverse modelling. Consequently, only differences in the modelling of atmospheric transport may cause differences in the estimated fluxes.

In our framework, we show that transport model errors lead to a discrepancy of 27 Tg yr⁻¹ at the global scale, representing 5 % of total methane emissions. At continental and annual scales, transport model errors are proportionally larger than at the global scale, with errors ranging from 36 Tg yr⁻¹ in North America to 7 Tg yr⁻¹ in Boreal Eurasia (from 23 to 48 %, respectively). At the model grid-scale, the spread of inverse estimates can reach 150 % of the prior flux. Therefore, transport model errors contribute significantly to overall uncertainties in emission estimates by inverse modelling, especially when small spatial scales are examined. Sensitivity tests have been carried out to estimate the impact of the measurement network and the advantage of higher horizontal resolution in transport models. The large differences found between methane flux estimates inferred in these different configurations highly question the consistency of transport model errors in current inverse systems.

Future inversions should include more accurately prescribed observation covariances matrices in order to limit

the impact of transport model errors on estimated methane fluxes.

1 Introduction

Methane (CH_4) is the second most important anthropogenically emitted long-lived greenhouse gas in the atmosphere. While CH_4 mixing ratios have varied between 350 and 800 parts per billion by volume (ppb) over the past 650 000 yr (Spahni et al., 2005), current atmospheric methane levels have increased by more than 600 ppb since 1950 (Etheridge et al., 1992), reaching a global mean of 1794 ppb in 2009 (Dlugokencky et al., 2011). Methane is primarily emitted by biogenic sources linked to anaerobic decomposition of organic matter by methanogenic bacteria (in wetlands, rice paddies, animal digestion, waste, landfill and by termites). Emissions also involve thermogenic (geological sources, fossil fuel extraction, transportation and use) and pyrogenic (biomass and biofuel burning) sources. Global emission estimates range from 500 to 600 Tg yr^{-1} (Denman et al., 2007). Typical ranges for estimates of global emissions for each process are of $\pm 30\%$ (e.g. agriculture and waste) to more than $\pm 100\%$ (fresh water emissions) (Kirschke et al., 2013). Atmospheric methane is removed mainly by the oxidation by OH radicals in the troposphere (90 % of the total sink). Additional sinks are the destruction in dry soils (methanotrophic bacteria), the oxidation in the stratosphere (OH, $\text{O}(^1\text{D})$) and the oxidation by active chlorine in the marine planetary boundary layer (PBL) (Allan et al., 2007). Because methane both plays a key role in air quality issues (Fiore et al., 2002) and is 23 times more effective as a greenhouse gas than CO_2 on a 100-yr horizon (Denman et al., 2007), it is pertinent to better understand and to accurately quantify the spatial and temporal patterns of methane sources and sinks. Disagreements between recent studies (Kai et al., 2011; Levin et al., 2012; Aydin et al., 2011; Simpson et al., 2012; Rigby et al., 2008; Montzka et al., 2011; Bousquet et al., 2006, 2011) explaining the weakening in the CH_4 growth rate from 2000 to 2006 and its increase since 2007 reinforce the idea that methane fluxes are poorly understood, both for their long-term mean and for their inter-annual variations.

Since the end of the nineties, several research groups have developed inverse methods to estimate CH_4 fluxes from global to regional scales by optimally combining CH_4 measurements with prior information and atmospheric chemical transport models (CTMs). Based on the Bayesian paradigm, a cost function is minimized either by analytical (Hein et al., 1997; Houweling et al., 1999; Bousquet et al., 2006; Chen and Prinn, 2006) or variational techniques (Pison et al., 2009; Meirink et al., 2008). The former solves for fluxes from large regions at typical monthly time resolution using low-frequency surface observations as constraints. The latter uses a minimization technique that can be used for a larger inverse problem, assimilating high-frequency surface measure-

ments and satellite data, and solving for fluxes at the model resolution, therefore avoiding most of the aggregation errors of “large-region” inversions (Kaminski et al., 2001). Although these two methods differ in their implementation, they are both based on CTMs to link emissions and sinks to atmospheric CH_4 concentrations. Each CTM has its own characteristics: horizontal and vertical resolutions, boundary and initial conditions, meteorological drivers, advection schemes, sub-grid parameterization schemes for convection, turbulence or clouds, etc. Therefore, it is important to assess the sensitivity of estimated fluxes to the CTM used in the inversion process.

Since 1993, the TransCom experiment has compared the ability of transport models to represent trace gas concentrations in the atmosphere. Chronologically, the TransCom community characterized the atmospheric transport of CO_2 (Law et al., 1996; Geels et al., 2007), SF_6 (Denning et al., 1999), ^{222}Rn (Taguchi et al., 2011), and, more recently, CH_4 (Patra et al., 2011). One major outcome of the TransCom experiment, described in Patra et al. (2011), was that deficiencies in the ability of CTMs to accurately reproduce atmospheric methane concentrations hindering efforts to improve our knowledge on sources and sinks of methane. These limitations were thought to be due to both errors in the meteorological datasets used as drivers of the CTMs and in the CTM parameterizations. For the following, we define “forcing errors” as errors in the meteorological field used by the CTMs and “model errors” as errors in the CTMs themselves. Hereafter, “transport model errors” will be used to group together forcing and model errors.

For a long time, efforts to deduce regional fluxes of CH_4 have been limited by the low density, in both space and time, of atmospheric observations (Gurney et al., 2002). However, with the increasing spatial and temporal density of surface observing networks and the availability of satellite data, this limitation is becoming less dominant, putting more pressure on forcing and model errors. Furthermore, as scientific objectives are moving towards regional to local flux estimates, more observations are being developed closer to emissions sources. This implies that CTMs need to improve their ability to represent processes that are important at these scales, or at least to ensure that the forcing and model errors are properly quantified and accounted for in atmospheric inversions. In this context, the main goal of our study is to quantify the impact of the misrepresentation of atmospheric processes by CTMs on the methane fluxes estimated by inverse modelling.

At present, forcing and model errors are either approximated or neglected in inversions, although studies aiming at quantifying these errors have shown a potentially high impact on the inverse estimates. In particular, Gerbig et al. (2008) focused on vertical mixing uncertainties for CO_2 inversions and highlighted large values of errors related to atmospheric transport. Stephens et al. (2007) showed the large impact of deficiencies in the modelling of CO_2 vertical transport for emission estimations by inverse modelling. Lin and Gerbig

(2005) have assessed that horizontal wind was accountable for a 5 ppm error in the modelling of CO₂ during summertime. Engelen et al. (2002) showed that failure to properly account for these errors acts as a hard constraint on the inversion and produces incorrect solutions to the problem. Gloor et al. (1999) even claimed that inversions were not reliable for CO₂ flux monitoring because of the magnitude of transport model errors. The impact of transport model errors on inversions has already been studied for CO₂ (Gurney et al., 2002; Baker et al., 2006), but, to our knowledge, no study has investigated this issue for CH₄ yet.

In this paper, we estimate the impact of transport model errors on inverted CH₄ fluxes using one variational inversion scheme, one flux scenario, and 10 different synthetic observation datasets built from the model database of the TransCom-CH₄ experiment (Patra et al., 2011). Section 2 describes the methodology and the synthetic data used for our inversions. Section 3.1 presents the main differences in the forward modelling of CH₄ concentrations due to the different CTMs used in Patra et al. (2011). Such differences are useful to better understand the inversion results, which are explored in Sect. 3.2. Sensitivity tests of the impact of CTM resolution (Sect. 3.3) and density of the measurement network (Sect. 3.4) on the inverse estimates are then analysed. Section 4 discusses the limitations of this synthetic experiment and the implication of our work to better represent transport model errors in future inversions.

2 Methodology

2.1 The synthetic experiment

This study follows the TransCom-CH₄ intercomparison experiment (Patra et al., 2011), which aimed to quantify the role of transport, flux distribution and chemical loss in simulating the seasonal cycle, synoptic variations and the diurnal cycle of CH₄ mixing ratio. Significant differences in CTM simulations of CH₄ were identified in this work. For example, large differences were found in the CH₄ mixing ratios simulated by the different CTMs in the transition region between the troposphere and the stratosphere, especially at heights where the maximum vertical gradient in CH₄ occurred. A common protocol was followed in which each model used the same emissions, sinks and initial conditions. Therefore, simulated CH₄ mixing ratios for the different models should differ only because of the modelling of atmospheric transport by the CTMs (model errors) and the meteorology used to force them (forcing errors). In the TransCom experiment it was not possible to separate these two effects as simulations testing different meteorological forcings on the same CTM were not provided. The database of the TransCom-CH₄ experiment includes outputs of hourly CH₄ mixing ratios at 166 surface stations, 6 tall towers and 12 vertical profiles each for 6 different emission scenarios.

Here we apply a 2-step methodology (Fig. 1) to quantify the impact of the different models on the inverted methane fluxes. In a first step, daily-mean CH₄ concentrations are extracted from the ten forward simulations of the TransCom-CH₄ database, using their IAV INV (inversion-derived emissions, herein called INV) scenario, which includes monthly- and inter-annually varying emissions provided by Bousquet et al. (2006). In doing so, we create 10 synthetic daily-mean observation datasets at selected sites. In a second step, the same emission scenario (INV) is combined with each synthetic observation dataset to infer optimized fluxes using the PYVAR (PYthon VARIational) variational inversion system, developed at LSCE (Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement) (Chevallier et al., 2005) and based on LMDZ-SACS CTM (one of the TransCom models). As the INV scenario is also used to generate synthetic observation, it can be considered as the “true” flux hereafter referred as the “target”. Therefore, fluxes derived using the LMDZ-SACS (Laboratoire de Météorologie Dynamique model with Zooming capability-Simplifié Atmospheric Chemistry System) synthetic observations in the inversion system give exactly the target fluxes, within the numerical errors. CH₄ fluxes are estimated in all the grid cells of LMDZ-SACS for eight-day periods using the PYVAR inversion algorithm (see Sect. 2.3). By repeating the inversion process for each synthetic observation dataset, ten estimates of CH₄ fluxes are obtained. Assuming that the range of the ten CTMs used here cover the typical range of transport model errors (see Sect. 2.2), the comparison between these estimates provides an estimate of the influence of transport model errors on the CH₄ fluxes. Indeed, the differences found in the inverted CH₄ fluxes are only due to discrepancies in the modelling of atmospheric transport by the different CTMs and in the meteorological analyses/reanalyses fields driving them.

2.2 The chemistry transport models

Results from ten CTMs have been extracted from the TransCom-CH₄ experiment: ACTM (Atmospheric Chemistry Transport Model) (Patra et al., 2009), IFS (Integrated Forecast System) (<http://www.ecmwf.int/research/ifsdocs/CY37r2>), IMPACT (Integrated Massively Parallel Atmospheric Chemical Transport) (Rotman, 2004), IMPACT-High resolution (Rotman, 2004), LMDZ-SACS (version 4) (Hourdin et al., 2006; Pison et al., 2009), MOZART (version 4) (Model for Ozone and Related Chemical Tracers) (Emmons et al., 2010), PCTM (Parallel Climate Transition Model) (Kawa et al., 2004; Bian et al., 2006), TM5 (Transport Model, version 5) (Krol et al., 2005), TM5-High resolution (Krol et al., 2005) and TOMCAT (Toulouse Off-line Model of Chemistry and Transport) (Chipperfield 2006) (see Table 1 for more details).

These CTMs represent the diversity existing in the research community with horizontal resolutions ranging from 6° × 4° (TM5) to 0.7° × 0.7° (IFS) and vertical discretisation

Table 1. Main characteristics (vertical resolution, horizontal resolution and meteorological drivers) of the TransCom models used in this experiment.

Model name	Vertical resolution ¹	Horizontal resolution	Meteorological field
ACTM	67 σ	2.8 \times 2.8°	NCEP2
IFS	60 η	0.7 \times 0.7°	ERA-interim
IMPACT	55 η	5.0 \times 4.0°	NASA/GSFC/GEOS 4
IMPACT 1 \times 1.25	55 η	1.25 \times 1.0°	NASA/GSFC/GEOS 4
LMDZ-SACS	19 η	3.75 \times 2.5°	ECMWF
MOZART	28 σ	1.8 \times 1.8°	NCEP/NCAR
PCTM	58 η	1.25 \times 1.0°	NASA/GSFC/GEOS 5
TM5	25 η	6.0 \times 4.0°	ECMWF, ERA-interim
TM5 1 \times 1	25 η	1.0 \times 1.0°	ECMWF, ERA-interim
TOMCAT	60 η	2.8 \times 2.8°	ECMWF, ERA-40/interim

¹ σ vertical coordinates are pressure divided by surface pressure, η vertical coordinates are a hybrid sigma-pressure coordinate.

ranging from 19 (LMDZ-SACS) to 67 layers (ACTM) with various coordinate systems (sigma vertical and hybrid-sigma pressure). Focusing on the representation of atmospheric transport, two groups of models can be distinguished: models using the meteorological field from weather forecast analyses directly (IFS, IMPACT, MOZART, PCTM, TM5 and TOMCAT) and models nudging towards horizontal winds and/or temperature (ACTM and LMDZ-SACS). The different CTMs also use a large diversity of meteorological drivers: different versions of NCEP/NCAR (National Centers for Environmental Prediction/National Center for Atmospheric Research), NASA/GSFC/GEOS (National Aeronautics Space Administration/Goddard Space Flight Center/Goddard Earth Observation System) (version 4 and 5), ECMWF (European Centre for Medium-Range Weather Forecasts/ECMWF Reanalysis) (ERA-40 and ERA-interim) and JCDAS (Japan Meteorological Agency (JMA) Climate Data Assimilation System).

Although the parameterization schemes implemented in the CTMs may have been slightly modified or adapted from the original scheme, the main schemes of the different CTMs are referenced in Table 2. The different schemes, implemented in the models of this experiment, describing advection are Lin and Rood (1996), Leer (1977), Hourdin and Armengaud (1999), Hortal (2002), Russell and Lerner (1981) and Prather (1986). Several CTMs use Holtslag and Boville (1993) or an adaptation of this scheme to parameterize the planetary boundary layer mixing, although Walton et al. (1988), Laval et al. (1981), Louis (1979), Holtslag and Moeng (1991), Köhler et al. (2011) and Lock et al. (2000) are also used. The parameterization of convection processes is implemented in the CTMs by using different adaptations of the Tiedtke (1989), Zhang and McFarlane (1995), Bechtold et al. (2008), Rasch and Kristjánsson (1998) and Arakawa and Schubert (1974) schemes.

The CTMs used in this experiment are distinguished both by the reanalysis/analysis field used to drive the CTMs and

by their own characteristics (for example, resolution and parameterization schemes). As a result, this experiment studies the impact on methane fluxes of these two contributions together (errors in meteorological drivers and errors in the models themselves) with no real possibility to separate them.

Five additional model output datasets (ACCESS/Australian Community Climate and Earth System Simulator, Corbin and Law, 2011; CAM/Community Atmosphere Model, Gent et al., 2010; CCAM/CSIRO Conformal-Cubic Atmospheric Model, Law et al., 2006; GEOS-Chem 3-D chemistry transport model, Fraser et al., 2011; Pickett-Heaps et al., 2011 and NIES/National Institute for Environmental Studies 3-D chemical transport model, Belikov et al., 2011, 2013) are available in the TransCom database. Unfortunately, some specific characteristics of these simulations make them unsuitable for our study. Indeed, we have chosen only to focus on the model and forcing errors and neglect all other sources of error on the estimated fluxes. For example, the different OH distribution used in GEOS-Chem simulation influence the chemical sink and may lead to misinterpretation of the impact of transport model errors on the estimated fluxes. One can expect the same issue with CAM, CCAM and NIES since the total atmospheric burden of methane in these three models differs significantly from the atmospheric burden of LMDZ-SACS. The differences in mole fraction between LMDZ-SACS and the discarded models range typically from 20 ppb up to 42 ppb. Only models with differences of less than 5 ppb from LMDZ-SACS were retained, such discrepancies being thought to be primarily due to transport differences impacting the location and magnitude of the OH sink relative to CH₄. The ACCESS model, whose meteorology was not nudged towards real observations, has also been removed, since it cannot be expected to realistically simulate synoptic variations, which are essential in an inverse system using daily data.

2.3 Set-up of the PYVAR-LMDZ-SACS inversion system

The PYVAR-LMDZ-SACS system (Chevallier et al., 2005; Pison et al., 2009) finds the optimal state of CH₄ fluxes given CH₄ observations and a background estimate of fluxes using Bayesian inference formulated into a variational framework. The system iteratively minimizes the cost function J (Eq. 1) using an adjoint approach (Errico, 1997) and provides the best linear unbiased estimate, \mathbf{x} . The methane fluxes contained in \mathbf{x} are optimized for eight-day periods in all the grid cells of the model. The cost function J is a measure of both the discrepancies between measurements and simulated mixing ratios and between the background fluxes and the estimated fluxes, weighted by their respective uncertainties, expressed in the covariance matrices \mathbf{R} (measurement) and \mathbf{B} (prior fluxes). The mathematical theory concepts are

not detailed here, but may be found in Tarantola (2005).

$$J(x) = (y - Hx)^T R^{-1} (y - Hx) + (x - x^b)^T B^{-1} (x - x^b) \quad (1)$$

B is the prior error covariance matrix with respect to the INV emission scenario. Its diagonal is filled in with the variances set to 100 % of the square of the maximum of emissions over the eight neighbouring cells during each month. Off diagonal terms of **B** (covariances) are based on correlation e-folding lengths (500 km over land and 1000 km over sea). No temporal correlations are considered here. x^b is the prior estimate using fluxes from the INV scenario.

H, the observation operator connecting the measurement space to the flux space, is represented here by the off-line version of the general circulation model of the Laboratoire de Météorologie Dynamique (LMDZ) (Hourdin et al., 2006), complemented by a simplified chemistry module (SACS) to represent the oxidation chain of methane (Pison et al., 2009). Here, OH field (Spivakovsky et al., 2000) and loss rates, due to reactions of CH₄ with Cl and O(¹D), are prescribed as in Patra et al. (2011). LMDZ-SACS is run with a horizontal resolution of 2.5° × 3.75° and with 19 vertical levels.

y contains one set of synthetic observations for the whole period of inversion. In theory, the **R** matrix accounts for all errors contributing the mismatches between measurements and simulated CH₄ mixing ratios at the stations. The **R** matrix may be split into two major parts (see Eq. 2): measurement and model variances/covariances. Measurement variances/covariances account for potential instrumental errors, while model variances/covariances group representativity and transport model errors together:

$$R = R_{\text{measurement}} + R_{\text{model}} \quad (2)$$

Instrumental errors quantify the errors between the mole fractions measured by an instrument and the target mole fractions. For instance, Bergamaschi et al. (2005) assume an instrumental uncertainty of 3 ppb for methane measured at surface stations.

Representation errors account for the misrepresentation of a single spatial and temporal measurement point by a grid box of a 3-D model. Aggregation errors (Kaminski et al., 2001) are also included in representation errors. Transport model errors group together the forcing errors and the model errors. Forcing errors represent the contribution of the errors included in the reanalysis/analysis field which drive the CTMs, while model errors quantify uncertainties in the physical processes calculated by the CTM (convection, diffusion, advection, etc.).

Here, **R** is considered to be diagonal (no covariances) with variances taken from Globalview-CH₄ (Globalview-CH₄, 2009). Errors in Globalview-CH₄ are computed at each site as the residual standard deviation (RSD) of the measurements on a smooth curve fitting them. We use the RSD at each site as a proxy of the transport model errors, assuming

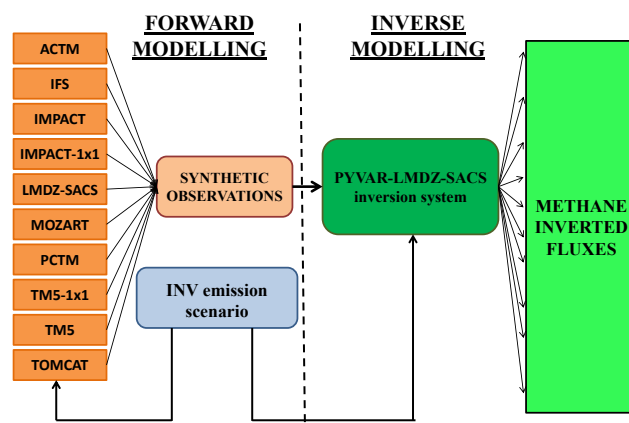


Fig. 1. Schematic showing the methodology of our experiment. Synthetic observations are created from the outputs of TransCom-CH₄ forward modelling simulations. The TransCom-CH₄ INV scenario is used both as the target CH₄ flux for forward modelling and as prior fluxes in the inversions. Several CH₄ fluxes are derived using the PYVAR-LMDZ-SACS inversion system for 2005.

that the measurement sites with a lot of variability around the mean (e.g. continental sites) are more difficult to model, especially for coarse global models (Geels et al., 2007). This simple approach has been used previously in atmospheric inversions (Bousquet et al., 2006; Yver et al., 2011; Rödenbeck et al., 2003). Errors at stations where Globalview-CH₄ data were not available have been interpolated from stations presenting the same characteristics (background/polluted, Northern/Southern Hemisphere, coastal/continental). A detailed discussion on the specification of the **R** matrix takes place in Sect. 4. For now, it is important to keep in mind that both forcing and model errors are not explicitly incorporated in the **R** matrix of our experiment, which is usually the case in current inversions.

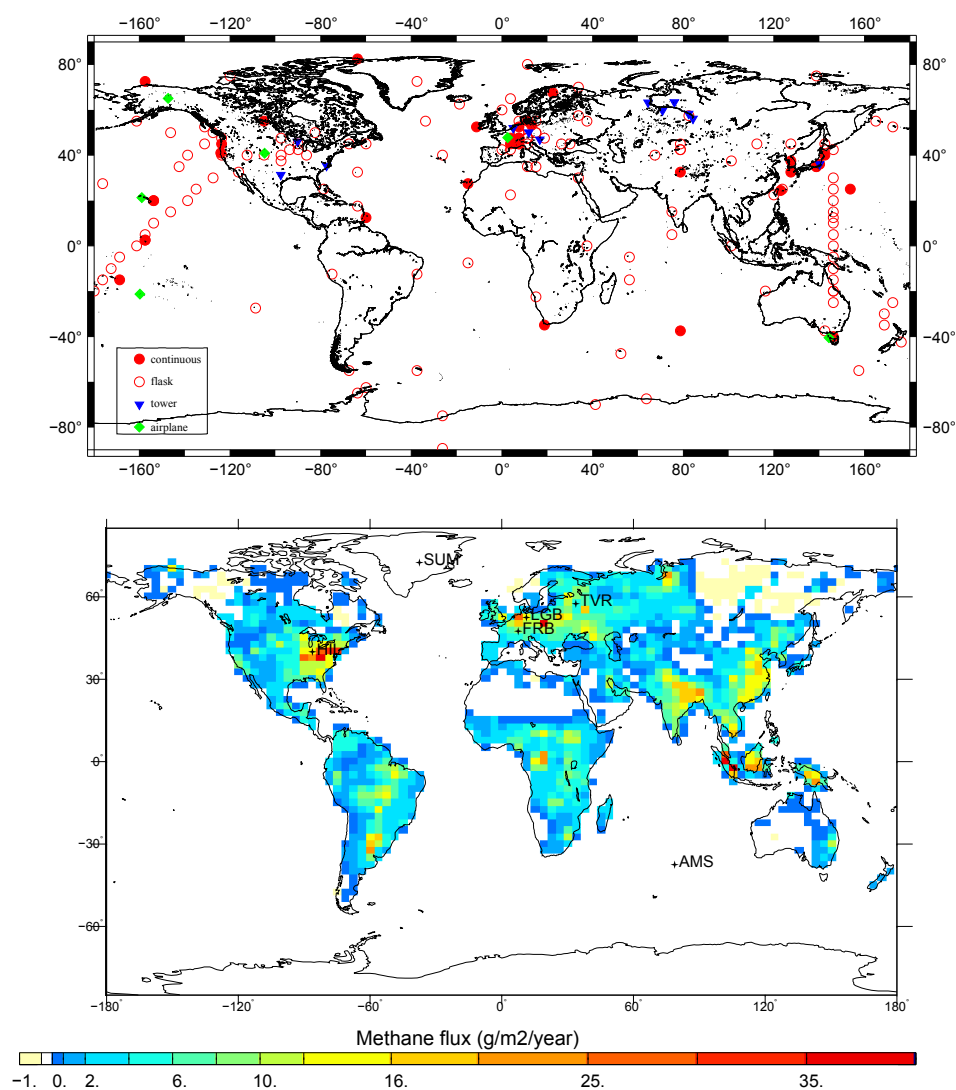
The period of analysis is the year 2005 but all the inversions are run with the same set-up over the extended period of July 2004–July 2006 to avoid edge effects and only keep estimated fluxes for the year 2005.

2.4 The synthetic observation datasets

The model outputs from the TransCom-CH₄ database are available at selected sites from the most widespread surface networks: Advanced Global Atmospheric Gases Experiment (AGAGE; <http://agage.eas.gatech.edu>; Prinn et al., 2000), the NOAA Earth Research Laboratory, Global Monitoring Division (<http://www.esrl.noaa.gov/gmd>) and the Japan Meteorological Agency (<http://www.jma.go.jp/jma/indexe.html>). The synthetic observations are output at the locations shown in Fig. 2, comprising 166 surface stations (including 29 mobile measurements on ships), 6 vertical profile (aircraft) and 12 tall towers. Some of these sites are continuous in situ stations (red-filled circles). In some other locations, flux

Table 2. Main transport and sub-grid parameterization schemes (advection, convection and planetary boundary layer (PBL) schemes) of the TransCom models used in this experiment.

Model name	Advection scheme	Convection scheme	PBL mixing scheme
ACTM	Lin and Rood (1996)	Arakawa and Schubert (1974)	Holtlag and Boville (1993)
IFS	Hortal (2002)	Bechtold et al. (2008)	Köhler et al. (2011)
IMPACT	Lin and Rood (1996)	Rasch and Kristjánsson (1998)	Walton et al. (1988)
LMDZ-SACS	Leer (1977); Hourdin and Armengaud (1999)	Tiedtke (1989)	Laval et al. (1981)
MOZART	Lin and Rood (1996)	Zhang and McFarlane (1995)	Holtlag and Boville (1993)
PCTM	Lin and Rood (1996)	similar to Tiedtke (1989)	Louis (1979) for stable, Lock et al. (2000) for unstable
TM5	Russell and Lerner (1981)	Tiedtke (1989)	Louis (1979); Holtlag and Moeng (1991)
TOMCAT	Prather (1986)	Tiedtke (1989)	Holtlag and Boville (1993)

**Fig. 2.** Geographical representation of the two main inversion components: atmospheric constraint locations (top) and the INV emission scenario (bottom).

samples are collected on a weekly basis (empty red circles). The blue triangles in Fig. 2 show the locations of tall towers and the green diamonds show where aeroplane measurements were taken. For continuous stations, daily means

have been computed to be assimilated in the PYVAR inversion framework. In order to mimic realistic sampling strategies, 4 data per month are randomly chosen for each flask site. Following the approach that is often taken when real

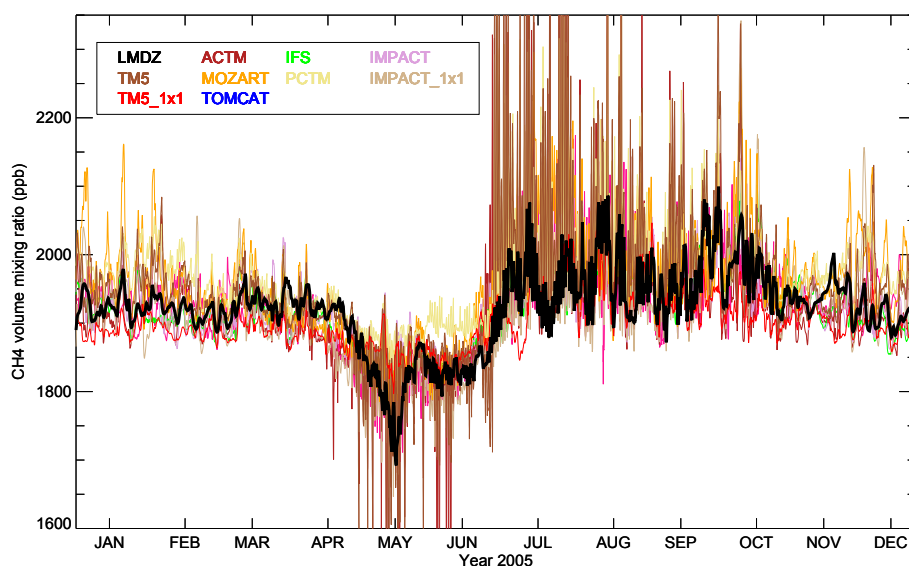


Fig. 3. Time series of daily CH₄ mixing ratio at Karasev (58.25° N, 82.40° E) for 2005. Each TransCom model is represented by a specific colour, while LMDZ-SACS is represented by the black line.

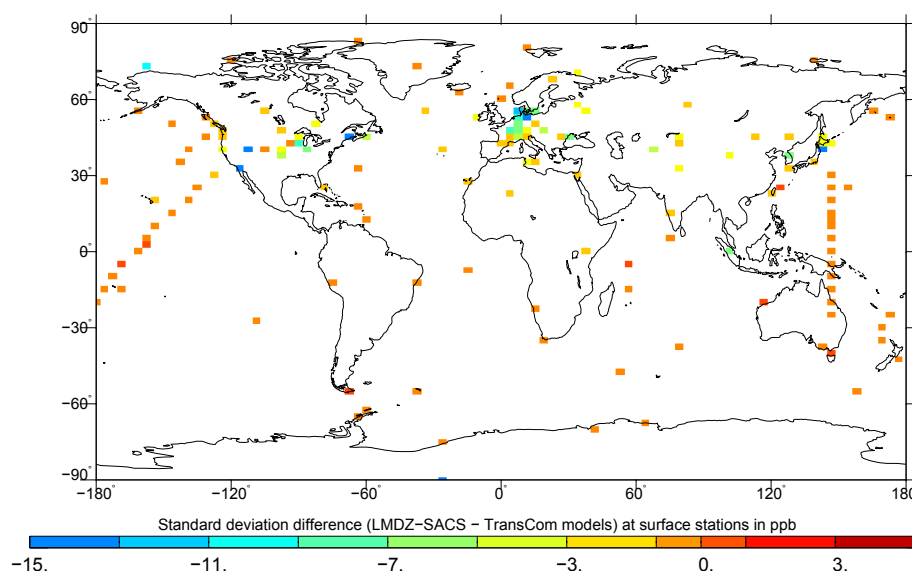


Fig. 4. Map of the differences in the “synoptic” standard deviation (STD) computed for CH₄ mixing ratio simulated by LMDZ-SACS and TransCom models at surface stations ($\sigma_{\text{LMDZ-SACS}} - \overline{\sigma_{\text{TransCom}}}$; $\overline{\sigma_{\text{TransCom}}}$ is the average of all TransCom models STD). The synoptic STD difference is expressed in ppb.

observations are used (e.g. Peylin et al., 2005), high altitude (1500 m a.s.l. – metres above sea level) flask measurements are used only in the early morning (07:00 LT) because during the day, due to growing planetary boundary layer, these sites could be influenced by sources and air flows from the neighbouring valleys that may not be resolved by the TransCom models. Towers are considered as continuous stations, from which daily averages are calculated. Two afternoon flight per week are considered for every aeroplane site, on a random basis. When several measurements are available in the

same grid box, only the observation located at the highest altitude is kept in the inversion.

We performed reference inversions using an ideal future network (NET1), which contains 166 continuous surface stations. In this network, we assume that all flask sampling sites become continuous. Indeed, if the efforts and the funding to develop and maintain surface networks are preserved (Houweling et al., 2012), more continuous stations should appear around the world in the next years, supplying very valuable information for inversions (Law et al., 2002). No

information on the CH₄ vertical distribution provided by tall towers or by aeroplanes are taken into consideration in the reference inversions.

However, because inversions are highly sensitive to the measurements sampled within the PBL (Geels et al., 2007), two other networks are tested (Fig. 2): a present-day surface network (NET2) with flask sampling sites (empty red circles) and continuous surface stations (filled red circles), and an extension of NET2 that includes aeroplane and tower data (NET3). The differences between the NET2 and NET3 estimates provide information on the contribution of PBL and tropospheric data to CH₄ flux estimates. The results are presented in Sect. 3.2 for NET1, and sensitivity tests using NET2 and NET3 are analysed in Sect. 3.4.

3 Results

3.1 Transport model discrepancies in forward modelling

Differences in the simulated CH₄ mixing ratios by the 10 TransCom models (Patra et al., 2011) can provide insights that could help in understanding the inversion results (Sect. 3.2). As mentioned in Sect. 2, differences in the CH₄ mixing ratio distributions given by the 10 CTMs are only due to differences in the meteorology (reanalysis fields and in the modelling of the atmospheric transport (advection schemes, sub-grid scale parameterizations, horizontal and vertical resolutions). In this synthetic experiment, methane mixing ratios simulated by LMDZ-SACS are considered to be the target and we analyse the spread of other models around LMDZ-SACS.

3.1.1 Synoptic variability

Large differences in the seasonal cycle and synoptic-scale variations of simulated CH₄ mixing ratios are observed at continental sites, as illustrated at Karasev station (58.25°23 N; 82.40°23 E, Russia) (Fig. 3). For this station, located close to high emission zones in summer, differences in the magnitude of the seasonal cycle can be related to differences in the vertical transport within the PBL, which is primarily simulated by sub-grid scale parameterizations. Phase differences observed in the synoptic variations at Karasev can directly be related to the differences in the meteorological field used by the models. Indeed, CTMs using similar meteorological drivers are found to be more highly correlated with each other than with other models. For instance, methane time series simulated by IFS using ERA-interim reanalysis are highly correlated to TM5 1 × 1 and TM5, which use the ERA-interim reanalysis as well, with linear Pearson correlation coefficient of 0.92 and 0.84 respectively, whereas the average correlation of IFS with other models is approximately 0.68.

To more precisely quantify the magnitude of the variability between the synthetic observations and the target CH₄ mixing ratios generated by LMDZ-SACS, we compute the differences between the CH₄ mole fraction standard deviation (STD) of LMDZ-SACS and STD of other TransCom models at all surface stations of NET1 (Sect. 2.4). Discrepancies in the modelling of both the seasonal cycle amplitude and the synoptic variability contribute to STD differences. Hereafter, we call “synoptic STD” the STD related to synoptic variability when the seasonal cycle is removed from the time series. The analysis of STD at 16 continental stations shows that synoptic variability dominates over seasonal variability: STD related to synoptic variability (respectively related to seasonal cycle) are 87 % (respectively 42 %) of the total STD values. Moreover, synoptic differences can be converted into expectations for the estimates by inverse modelling: TransCom models simulating a larger synoptic variability (and consequently higher concentration peaks) than LMDZ-SACS at some stations are expected to give higher inverted fluxes within the area impacting these stations.

The map of synoptic STD differences between LMDZ-SACS and the average of all the TransCom models ($\sigma_{\text{LMDZ-SACS}} - \overline{\sigma_{\text{TransCom}}}$; $\overline{\sigma_{\text{TransCom}}}$ being the average of all TransCom model “synoptic STD”, $\sigma_{(\text{TransCom model})_i}$) is presented in Fig. 4 at stations of NET1. At first glance, a strong contrast is found between continental stations and stations with a dominant oceanic influence. On the one hand, synoptic STD differences close to zero ppb (or slightly positive) are found at oceanic stations of the Southern Hemisphere (e.g. AMS station in the Indian Ocean). On the other hand, strong negative values of synoptic STD differences are found for continental stations of the Northern Hemisphere, suggesting that amplitude of synoptic variations simulated by LMDZ-SACS are smaller, on average, than those simulated by the other TransCom models at these stations. Indeed, a previous study (Geels et al., 2007) has mentioned that LMDZ, as well as some other global models, underestimates synoptic variations of CO₂ concentrations and that the fast boundary layer ventilation of LMDZ could explain the small surface concentration peaks.

Stations located in the vicinity of methane sources appear to be associated with strong negative synoptic STD difference values. For instance, TVR (57.50° N; 33.75° E, Eastern Europe), LGB (52.8° N; 10.8° E, Europe), FRB (47.50°23 N; 7.50° E, Europe) and HIL (40.1° N; 87.9° W, east coast of the USA) are exposed to high sources of methane from the INV scenario (see Fig. 2) and the mean synoptic STD differences at these stations are respectively −20, −23, −35 and −15 ppb. Indeed, small-scale transport processes, such as turbulence in the planetary boundary layer, which may be poorly represented by global CTMs, have a large influence on the mole fractions simulated at stations close to large emission areas. In contrast, stations far from any methane sources are mainly influenced by large scale transport of CH₄ signals from remote sources, which produce smaller differences

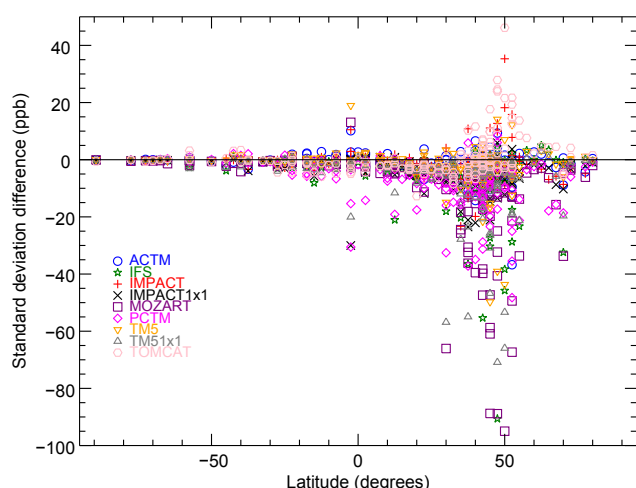


Fig. 5. Latitudinal distribution of the “synoptic” standard deviation (STD) differences between LMDZ-SACS and other TransCom models at all surface stations ($\sigma_{\text{LMDZ-SACS}} - \sigma_{(\text{TransCom model})_i}$). Each TransCom model is represented by a specific symbol. The STD difference is expressed in ppb.

between models. Stations may also be located either close to, or far from, CH_4 sources, depending on the season. Figure 3 shows a high concentrations period (from May to August) at Karasevov which is completely correlated to emissions from wetlands in this area at this period of the year. The average STD for all models during the high methane emission period is 38 ppb, while the STD falls to 15 ppb outside this period. Turbulent mixing in the boundary layer and convection are the main processes acting in this area during the summer period. The more methane is emitted, the more skills in the modelling of turbulent mixing and convection are required to accurately simulate methane mixing ratios, leading to a poorer agreement between models during the summer months.

In order to better analyse the modelling of synoptic variability for each individual TransCom model, we computed the latitudinal distribution of synoptic STD differences at surface stations (Fig. 5). In the Southern Hemisphere, almost no distinction can be made between models: synoptic STD differences are around 0 ppb. In the Northern Hemisphere, MOZART, TM5 1×1 , IFS and PCTM exhibit the largest negative synoptic STD difference values, meaning that these models simulate higher variability than LMDZ-SACS. On the contrary, TOMCAT is one of the models showing the largest positive difference with LMDZ-SACS. These statements are especially true for continental stations in the Northern Hemisphere. As a consequence, it is expected to find higher inferred emissions for MOZART, TM5 1×1 , IFS and PCTM and lower emissions for TOMCAT at least locally (close to monitoring sites) compared to the target INV emission scenario.

The impact of horizontal resolution on the modelling of synoptic variability is detailed in Sect. 3.3.

3.1.2 Inter-hemispheric (IH) exchange time

The inter-hemispheric (IH) exchange time is a good indicator with which to analyse large scale transport differences between transport models. The map of mean bias in simulated CH_4 mixing ratios at surface stations between LMDZ-SACS and other TransCom models ($y_{\text{LMDZ-SACS}} - y_{\text{TransCom}}$) reveals negative values at stations in the Northern Hemisphere, meaning that CH_4 mixing ratios simulated by LMDZ-SACS are, on average, lower than those simulated by other TransCom models (Fig. 6). In contrast, positive biases at surface stations in the Southern Hemisphere are found. Using SF_6 observations, LMDZ-SACS has been identified to exhibit relatively slow IH exchange, characterized by an exchange time of 1.2 yr, which is in the lower range of the ensemble of TransCom models (Patra et al., 2011, Fig. 8). Therefore, compared to the other models, LMDZ-SACS tends to transport methane more quickly from the dominant emission zones of the Northern Hemisphere to the Southern Hemisphere. This fast IH transport produces the inferred negative biases in the north and positive biases in the south. Therefore, one can expect that higher emissions will be necessary over the northern continents, and/or lower emissions over the southern continents when deriving fluxes using LMDZ-SACS, compared to when synthetic observations were taken from the other models.

This finding is robust when looking at individual models and not only at the model average (Fig. 7). For instance, TM5 (orange triangles) shows larger gradients of biases between the stations of the Northern Hemisphere (difference of around -20 ppb) and of the Southern Hemisphere (difference of around $+10$ ppb). This is consistent with TM5 having the longest IH exchange time in Patra et al. (2011). As a consequence, using synthetic observations from TM5 in the inversions should increase the IH gradient of emissions, with lower emissions in the Southern Hemisphere and higher emissions in the Northern Hemisphere.

3.2 Impact of transport model errors on inversions

Ten variational inversions have been performed, in which methane fluxes were derived using synthetic observations from TransCom- CH_4 models (Patra et al., 2011). The same set-up (prior emissions from INV scenario, observation errors, prior errors, etc.) has been used for every inversion (see Sect. 2.3). In order to keep the explanations clear in the following sections, each inversion is called by the name of the CTM used to generate the synthetic observations.

3.2.1 Global and hemispheric fluxes

Figure 8 presents the total estimated CH_4 fluxes for every inversion at global scale. The blue bars show the global

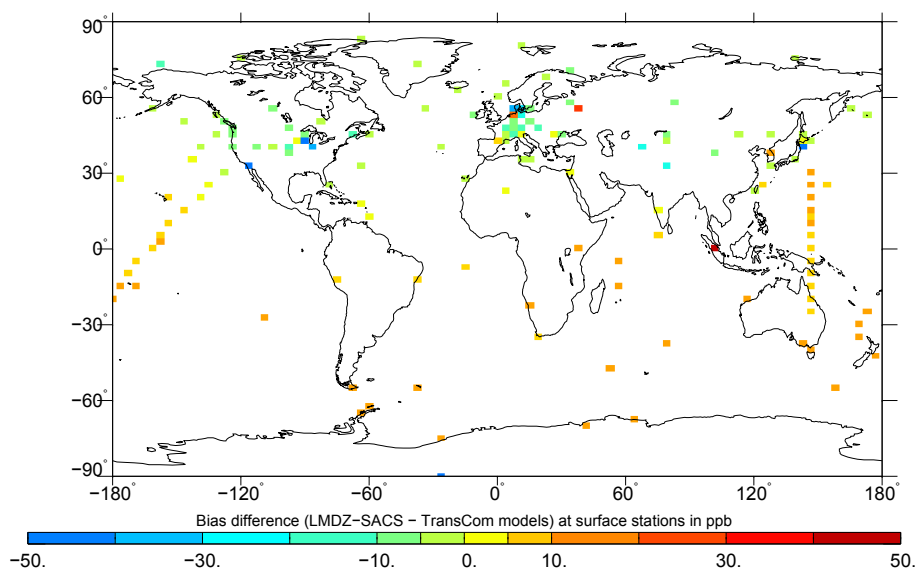


Fig. 6. Bias between CH_4 mixing ratios simulated by LMDZ-SACS and other TransCom models ($y_{\text{LMDZ}} - \overline{y_{\text{TransCom}}}$; $\overline{y_{\text{TransCom}}}$ is the average of CH_4 mixing ratios simulated by all TransCom models) at surface stations. The bias is expressed in ppb.

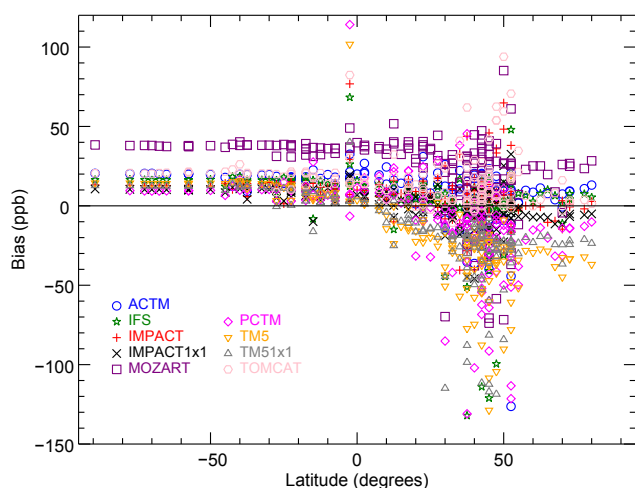


Fig. 7. Latitudinal distribution of the bias between CH_4 mixing ratios simulated by LMDZ-SACS and TransCom models ($y_{\text{LMDZ}} - y_{\text{TransCom model } i}$) at all surface stations. Each TransCom model is represented by a specific symbol. The bias is expressed in ppb.

CH_4 estimates for TransCom models and the red line points out the value of the target global CH_4 flux (523 Tg yr^{-1} , INV scenario). The inferred CH_4 fluxes for 2005 range from 523 Tg yr^{-1} (MOZART inversion) to 550 Tg yr^{-1} (PCTM inversion), with an average of 538 Tg yr^{-1} . These results show that discrepancies in the modelling of atmospheric transport among the CTMs are responsible for a spread of 27 Tg yr^{-1} (5 % of the target flux) on the inverted fluxes at the global scale. For comparison, the annual global methane emissions from rice paddies are estimated to be 37.5 Tg yr^{-1}

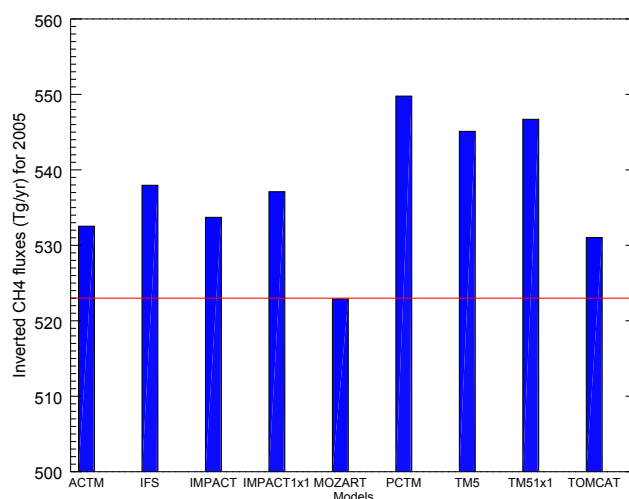


Fig. 8. Inverted CH_4 fluxes for every TransCom model at the global scale in 2005. The red line represents the value of the target methane flux at the global scale (523 Tg in 2005 – INV scenario).

in 2008 (EDGAR-v4.2, 2011). Global methane emissions from biofuel and biomass burning have been estimated to be 36 Tg yr^{-1} in the late nineties (Andreae and Merlet, 2001; van der Werf et al., 2010). Likewise, EDGAR-v4.2 (2011) infers methane emissions of 19.8 Tg yr^{-1} from European countries of the OECD in 2005. Consequently, in order to detect changes in methane emissions from a large region or to estimate global emissions from some specific process, the impact of transport model errors on the inverse estimates is currently an important limitation.

Table 3. Estimates of hemispheric methane fluxes in teragrams of methane per year (Tg yr^{-1}) for every TransCom model inversion. Inverted fluxes in the Northern (NH) and in the Southern Hemisphere (SH) are presented in the first two columns. The inter-hemispheric gradient (NH estimate–SH estimate) is shown in the third column.

	Northern Hemisphere	Southern Hemisphere	Difference NH–SH
Target flux	368	155	213
ACTM	391	142	249
IFS	388	150	238
IMPACT	385	148	237
IMPACT 1×1	385	152	233
MOZART	378	145	233
PCTM	410	140	270
TM5	429	116	313
TM5 1×1	414	133	281
TOMCAT	387	144	243

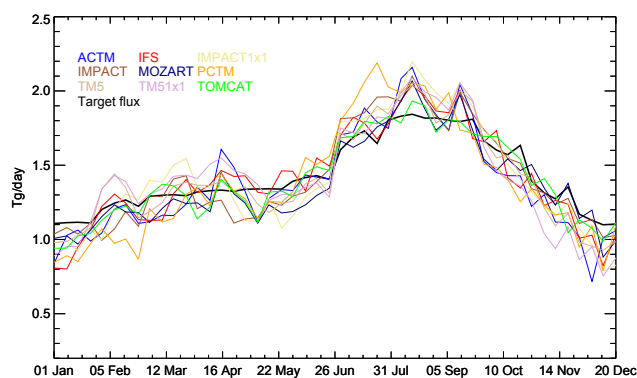


Fig. 9. Time series of weekly estimated CH_4 fluxes at the global scale for every TransCom model. The black line represents the time series of the target flux

It is noteworthy to mention that all inversions have derived higher or equal total fluxes at the global scale compared to the target flux. Indeed, as previously stated, the faster IH transport exhibited by the LMDZ-SACS model, compared to other models, yields higher average emissions in the Northern Hemisphere ($+29 \text{ Tg yr}^{-1}$) and lower average emissions (-14 Tg yr^{-1}) in the Southern Hemisphere. This leads to a global increase of 15 Tg yr^{-1} in order to match the concentrations of the synthetic observations. Table 3 summarizes the estimates in the two hemispheres and the difference in emissions between the Northern and the Southern Hemisphere for each model. As expected, TM5 derives the highest estimates in the Northern Hemisphere and the lowest estimates in the Southern Hemisphere, which is consistent with the slower IH exchange time exhibited for TM5 compared to LMDZ-SACS.

Time series of estimated CH_4 fluxes at the global scale (Fig. 9) show similar seasonal variations for all the CTMs,

with a peak in methane emissions during the boreal summer. The overlaid black line represents the target methane flux time series. Maxima in the estimated fluxes reach 0.3 Tg day^{-1} , which is about half of the amplitude of the seasonal cycle (0.7 Tg day^{-1}). The target flux is in the higher part of estimated emissions range during boreal winter and in the lower part during boreal summer. Consequently, the amplitude of the estimated CH_4 flux seasonal cycle is, on average, twice as large ($\sim 1.4 \text{ Tg day}^{-1}$) as that of the target flux at the global scale. Indeed, the fast IH exchange time of LMDZ-SACS accentuates the derived seasonal cycle by increasing emissions in the Northern Hemisphere during boreal summer and decreasing emissions in the Southern Hemisphere during austral summer.

3.2.2 Regional fluxes

Figure 10 shows estimated CH_4 fluxes for seven continental regions (Europe, North America, Asia, South America, Africa, Oceania and Boreal Eurasia). The spread of the inverted regional fluxes quantifies the impact of transport model errors on the estimation of methane fluxes inferred by atmospheric inversions at regional scales. Transport model errors produce much larger relative uncertainties on the methane emission estimates at the regional scale than at the global scale: from 23 % for Europe (16 Tg yr^{-1}) to 48 % for South America (35 Tg yr^{-1}). The spread in Africa is quite large (25 Tg yr^{-1}) with estimates split in two groups: inversions deriving emissions around 95 Tg yr^{-1} (ACTM, TOMCAT and TM5) and those around 75 Tg yr^{-1} (IFS, IMPACT, IMPACT 1×1 , MOZART, PCTM and TM5 1×1) for 2005.

Some characteristics of the TransCom models highlighted in Sect. 3.1 have a direct impact on the estimates at continental scale. For instance, the impact of the particularly fast IH exchange time of LMDZ-SACS is noticeable at continental scale. Indeed, for the majority of models, inversions derive higher estimates than the target fluxes in continental regions of the Northern Hemisphere (especially for North America). On the contrary, derive emissions from Southern Hemisphere continental regions tend to be lower than the target fluxes (especially for Oceania). This characteristic is particularly obvious for TM5, which has a particularly slow IH exchange time in Patra et al. (2011).

The spread of fluxes derived for North America is quite large (37 %). PCTM shows particularly high fluxes in this region, a feature which may be related to the propensity for PCTM to simulate relatively high concentration peaks at continental stations, especially in North America (see Sect. 3.1.1). On the other hand, TOMCAT, which simulates smaller synoptic variability than LMDZ-SACS, has estimates in Europe and in North America that are at the lower end of the derived estimates. These results confirm that discrepancies in synoptic variability of CH_4 concentrations have an impact on the flux estimates in regions with many continental stations in the vicinity of large emission areas,

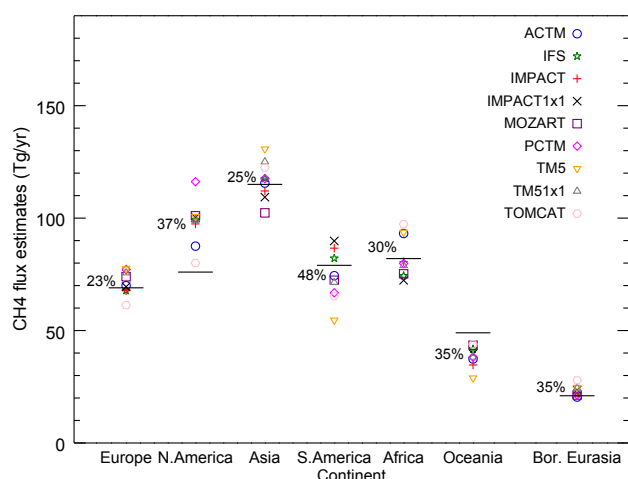


Fig. 10. Inverted CH_4 fluxes at regional scale. Seven continental regions are displayed here (Europe, North America, Asia, South America, Africa, Oceania and Boreal Eurasia). Every symbol shows the estimated value for a specific TransCom model and for a specific region. The percentage indicates the spread of the estimates as a whole for every region. The black lines show the target methane regional estimates.

where modelling of synoptic variability may be very different among CTMs (Sect. 3.1.1).

Time series of weekly methane flux estimates are presented for one region of the Northern Hemisphere (Western Europe) and one region of the Southern Hemisphere (Oceania; Fig. 11). The spread in estimated methane fluxes is much higher at regional than global scales (see Sect. 3.2.1), relative to the amount of methane emitted from these regions. The mean flux variability in Western Europe has a magnitude more than twice as high ($\approx 0.1 \text{ Tg day}^{-1}$) as the seasonal cycle of the target flux ($\approx 0.04 \text{ Tg day}^{-1}$). Moreover, the distribution of flux estimates in Western Europe is slightly larger during winter months than during summertime. Indeed, extratropical storm tracks, which directly influence atmospheric conditions in Western Europe, are more active in winter than in summer. Consequently, more uncertainty is expected in wind field provided by weather forecast centers during this period. Differences in the modelling of shallow winter boundary layers can also contribute to the large variability among models.

The amplitude of the estimated flux variability in Oceania is less pronounced because the magnitude of methane emissions is much lower than in Western Europe. However, again, the impact of the IH transport is clearly seen in the inverted fluxes: the target flux in Oceania is in the upper range of the estimated CH_4 fluxes throughout the time series, in agreement with the lower inverted emissions in the Southern Hemisphere regions, as would be expected following Sect. 3.1.2.

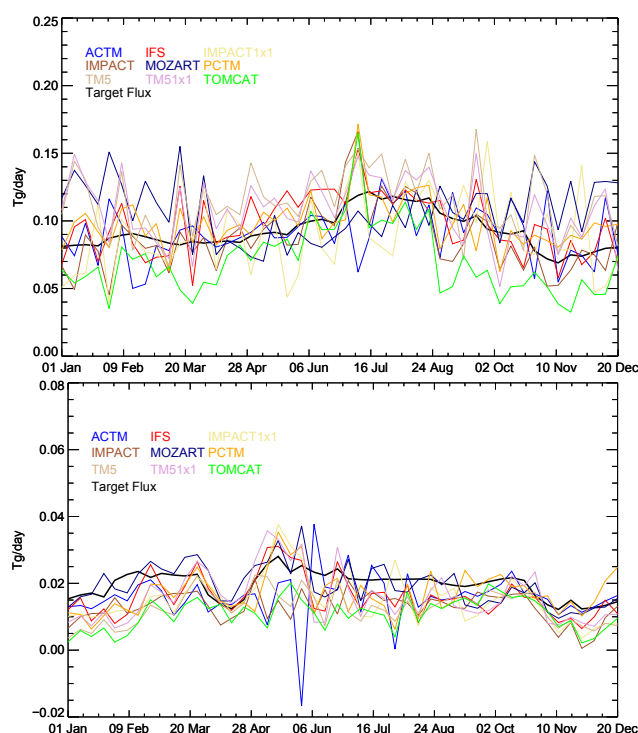


Fig. 11. Time series of weekly estimated CH_4 fluxes in Tg per day for Western Europe (top) and Oceania (bottom). The black line represents the time series of the target flux

3.2.3 Spatial distribution of inverted fluxes

This section examines one of the advantageous aspects of the inversion using the variational approach, i.e. the ability to infer optimal fluxes at grid-box scale.

Figure 12 displays the maps of the differences between the target CH_4 fluxes (INV scenario) and inverted CH_4 fluxes for each model at the grid-scale. A positive (negative) difference, from light to dark red colours (from light to dark blue), means that fluxes estimated in inversions using synthetic observations are larger (smaller, respectively) compared to the target CH_4 fluxes.

When compared to the target flux field we find groups of inversions that have coherent spatial patterns in the derived flux anomaly in some regions. For example, most inversions derive lower emissions than the INV scenario in South America, more or less around a north–south track. It is very clear for TOMCAT, PCTM and TM5. Some other models (IMPACT 1×1 , IFS and TM5 1×1), characterized by higher horizontal resolution, show a dipole of emissions probably associated with the simulated position of the ITCZ (Intertropical Convergence Zone): they derive higher emissions than the target flux in the north of South America and lower fluxes in the south. In other regions, all inversions derive mostly the same sign for emission changes, compared to the target, but their geographical distribution within the

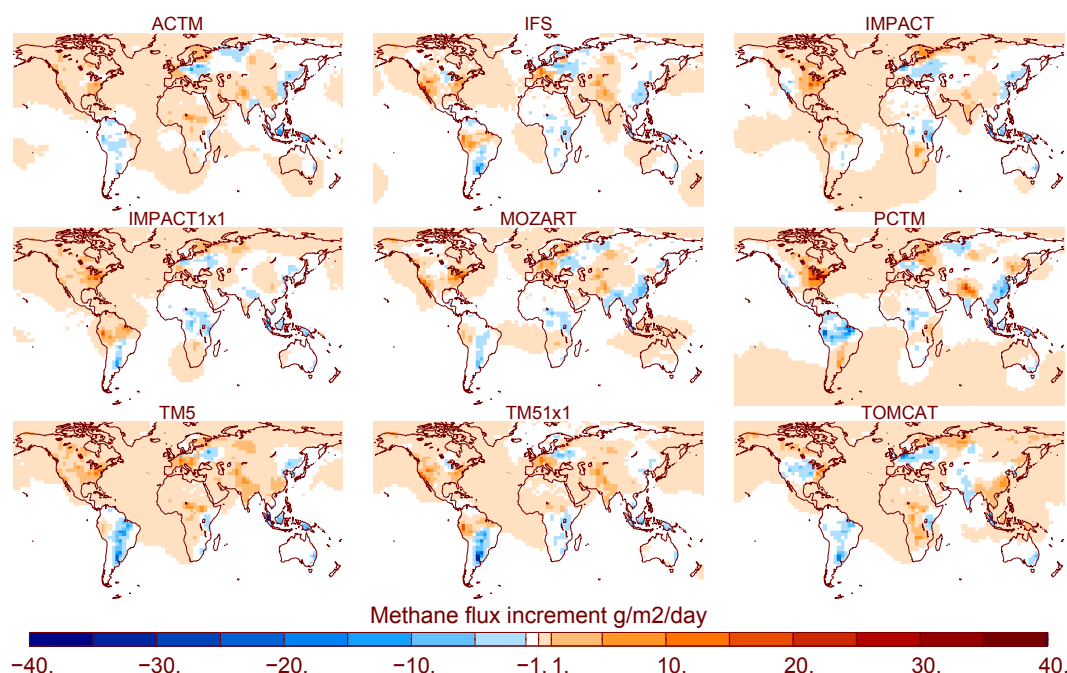


Fig. 12. Panel showing the differences between CH_4 analysed fluxes and target fluxes ($X_{\text{TransCom}}^{\text{analysed}} - X_{\text{target}}$) at grid box scale for every TransCom model. The flux differences are expressed in $\text{g m}^{-2} \text{day}^{-1}$.

region may be very different depending on the model. For example, in North America most inversions derive higher emissions than the target methane emission. However, higher emissions are derived on the east coast of the United States by IMPACT, IMPACT 1×1 and PCTM, on the west coast by IFS and TM5 1×1 , and on both coasts of the United States by MOZART and TM5.

In Asia, Europe and Africa it is difficult to distinguish any pattern in the inferred emissions. It is important to note that IFS and TM5 1×1 have a similar spatial distribution of inverted fluxes probably related to the fact that they use the same meteorological field and have a very similar horizontal resolution.

To synthesize the impact of transport model errors at the grid scale, Fig. 13 shows the map of the spread between all methane inverse estimates as a percentage of the target flux. The regions previously identified with large discrepancies in the different methane estimates are highlighted here with grid cell differences up to 150 % of the target flux. For instance, we clearly see two patterns with large spreads in South America, owing to the emission dipole mentioned in the previous analysis. The west coast of the United States and the poorly constrained region of Eastern Siberia also show a large spread. We also see larger spreads in the grid cells surrounding some stations strongly constraining the inverse system. This is the case, for instance, at Cape Grim (40.68°S ; 144.68°E , Australia, Oceania) and at Mount Kenya (0.06°S ; 37.30°E , Kenya, Africa).

3.3 Sensitivity to the model horizontal resolution

The TM5 and IMPACT simulations included higher resolution versions (TM5 1×1 and IMPACT 1×1) which allow the investigation of the impact of an increasing horizontal resolution on the derived methane fluxes.

First, STD due to synoptic variability for the high-resolution version of TM5 and IMPACT are, on average, higher at continental stations of the Northern Hemisphere (see Fig. 5). Indeed, one can assume that the increase in horizontal resolution leads to less smoothing of the high concentration gradients in the high methane emission regions. It is found that STD values related to synoptic variability are, on average, 15 ppb higher for TM5 1×1 than for TM5 and 9 ppb higher in the case of IMPACT 1×1 compared to IMPACT, which could have a direct impact on the global estimate by increasing the emissions of TM5 1×1 and IMPACT 1×1 compared to TM5 and IMPACT.

Concerning inversion results, there is only a 2 Tg yr^{-1} difference between estimates of TM5 1×1 (547 Tg yr^{-1}) and TM5 (545 Tg yr^{-1}) inversions and 3 Tg yr^{-1} between estimates of IMPACT 1×1 (537 Tg yr^{-1}) and IMPACT (534 Tg yr^{-1}) inversions at the global scale. The increase of the global CH_4 emission estimates between the high and the low resolution versions of the CTMs is in agreement with the previous analysis of STD values. Nevertheless, in Patra et al. (2011) (see their Fig. 8), it is shown that the IH exchange time of TM5 1×1 ($\sim 1.60 \text{ yr}$ in 2005) is faster than for TM5 ($\sim 1.75 \text{ yr}$ in 2005) which should result in a global

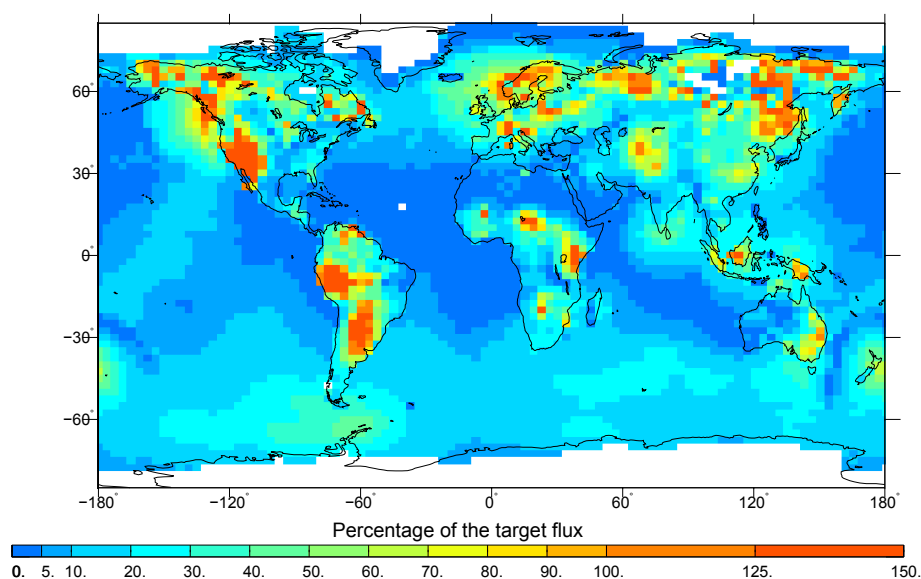


Fig. 13. Map of the spread of methane inverse estimates at the model grid-scale as a percentage (%) of the target flux (INV emission scenario).

estimate closer to the target global estimate. As a consequence, the impact of synoptic variability on the global flux is probably balanced by the impact of IH exchange, which results in only a slight increase of the global flux derived by TM5 1×1 compared to TM5. The results are less clear for IMPACT/IMPACT 1×1 because the magnitude of these two effects (amplitude of synoptic variability and IH exchange) in the forward modelling study are smaller than for TM5 and TM5 1×1 .

The impact of horizontal resolution on the estimated methane fluxes may be relatively different at continental scales. Estimated fluxes in Europe and in North America are very close for TM5/TM5 1×1 (77 and 76 Tg yr^{-1} in Europe; 101 and 99 Tg yr^{-1} in North America) and IMPACT/IMPACT 1×1 (68 and 69 Tg yr^{-1} in Europe; 97 and 100 Tg yr^{-1} in North America). The larger amplitude of the synoptic variability of TM5 1×1 and IMPACT 1×1 does not result in larger fluxes, possibly because TM5 and IMPACT are already much more variable than LMDZ-SACS over these continents. On the contrary, differences between estimates of TM5/TM5 1×1 and IMPACT/IMPACT 1×1 are relatively large in Africa (94 and 79 Tg yr^{-1} for TM5 versions and 81 and 72 Tg yr^{-1} for IMPACT versions) and in Oceania (29 and 38 Tg yr^{-1} for TM5 versions and 35 and 40 Tg yr^{-1} for IMPACT versions). Estimates in Asia and South America are characterized by large differences between TM5 and TM5 1×1 (131 and 125 Tg yr^{-1} in Asia; 55 and 72 Tg yr^{-1} in South America), and small differences between IMPACT and IMPACT 1×1 (113 and 109 Tg yr^{-1} in Asia; 88 and 90 Tg yr^{-1} in South America). These larger changes could be due to tropical regions being less constrained in the inversions.

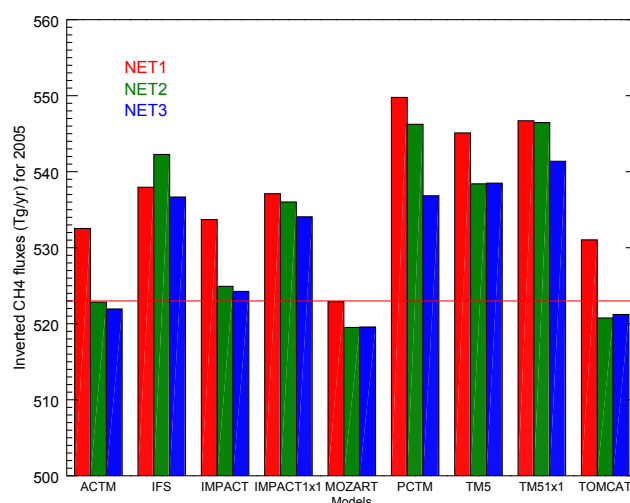


Fig. 14. Global methane estimates for every inversion using TransCom model outputs as synthetic observations in three network configurations. Results for NET1, NET2 and NET3 are respectively represented in red, green and blue. The red line shows the target value of the methane flux at the global scale (523 Tg yr^{-1}).

3.4 Sensitivity to the measurement network

The fluxes inferred by atmospheric inversions are sensitive to the location and density of observations used to constrain them. We have used two other networks (NET2 and NET3) to assess the sensitivity of the modelling and transport errors on estimated fluxes to the network. NET2 assumes a mix of flask and continuous data similar to the current situation. NET3 adds tower and aircraft measurements to NET2 (Sect. 2.4).

Using NET2, the inverse system derives lower global estimates compared to emissions derived using the NET1 configuration for all synthetic datasets, except for IFS (Fig. 14). For instance, fluxes derived using ACTM, IMPACT and TM5 drop to 523, 525 and 538 Tg yr⁻¹ in 2005, compared to 533, 534 and 545 Tg yr⁻¹ respectively in the case of NET1. If errors were unbiased and properly accounted in inversion, more constraints should ideally bring the estimated fluxes closer to the target. In other words, one could expect NET1 results to be closer to the target than NET2 fluxes. This discrepancy is discussed in more details in Sect. 4.

Estimates in the NET2 and NET3 configuration are very similar at the global scale, except for PCTM, IFS and the two high resolution versions of TM5 and IMPACT. Generally, the number of tall towers and aeroplane measurements is too low compared to the number of surface stations to produce a significant difference between estimates from NET2 and NET3 at the global scale. The higher horizontal resolution of IFS, IMPACT 1 × 1 and TM5 1 × 1 is a possible explanation for the differences obtained in the global estimates between the NET2 and NET3 configuration. Moreover, PCTM tends to simulate very strong vertical gradients compared to other models (Saito et al., 2013), potentially due to the larger number of vertical layers in the PBL, which could explain the differences found between NET2 and NET3 emission estimates for PCTM. The impact of vertical resolution on the inversion could not be investigated further since two variants of a model with different vertical resolutions were not available.

At a regional scale, the additional information provided by tall towers and aeroplanes included in the inversions (NET3) effectively reduced the spread in flux estimates in the regions where these additional data are available compared to the NET2 inversions (Fig. 15). The spread decreases from 27 to 16 Tg yr⁻¹ and from 7 to 4 Tg yr⁻¹ for respectively North America and Boreal Eurasia. The estimates also move closer to the target emissions. Consequently, one can assume that the system cannot match all surface, tower and aircraft measurements and derives emissions closer to the target for these regions. In Europe, the spread does not change much between NET2 (20 Tg yr⁻¹) and NET3 (21 Tg yr⁻¹). Indeed, in our synthetic experiment, NET3 has only 20 % additional synthetic observations in Europe compared to NET2. It suggests that NET3 estimates cannot be improved much in Europe compared to NET2 estimates. In regions where there are no additional synthetic observations in NET3 (South America, Africa and Oceania), inversions using NET3 synthetic observations are very similar to those obtained for NET2.

4 Discussion

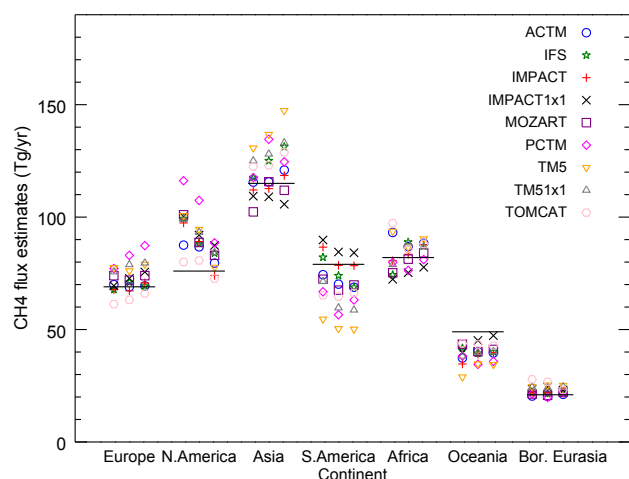
The previous section shows that forcing and model errors have a significant impact on CH₄ fluxes estimated by inverse modelling at the global scale. This impact is proportionally

higher at regional and grid-cell scales. Several results highlighted in our study question the way that errors are specified in atmospheric inversions, with non-adapted errors in the **R** observation covariance matrix. For instance, a badly simulated IH exchange time can lead to biased interpretations of atmospheric signals, in terms of inverted fluxes, if the errors do not fully account for this modelling imperfection. In Sect. 3.4, it is shown that NET1 estimates of the global CH₄ flux are further from the targeted flux as compared to NET2, even though more atmospheric constraints are considered in NET1 than in the NET2 configuration. Adding more constraints, as done in NET1, better define in time and space the regional gradients of concentration between stations, which emphasizes, in terms of cost to be reduced in *J*, the differences between LMDZ-SACS and the other models. Associated with a potentially erroneous estimation of errors in the **R** matrix, especially concerning transport model errors, an amplification of the impact of errors can occur, leading to a larger difference in the global emissions compared to the target emissions, for NET1 compared to NET2. This effect is amplified by the fact that most stations moving from continuous to discontinuous (flask) when moving from NET1 to NET2 are remote stations with smaller model differences than continental continuous stations remaining in NET2. We have shown that discrepancies in synoptic variability at surface stations may result in different methane estimated fluxes in the area impacting these surface stations after transport. As highlighted in the Sect. 3.2.2, the PCTM estimate in North America is much higher than the other estimates. It is probably due to the fact that large uncertainties associated with the modelling of synoptic variability with LMDZ-SACS are not fully accounted for in the inversion. These elements suggest a misspecification of errors in the **R** matrix.

Table 4 compares the errors at 25 stations, representative of the different types of site encountered (background, polluted, coastal, continental, etc.) contained in the **R** matrix of Chen and Prinn (2006), Bergamaschi et al. (2005) and our study based on Globalview-CH₄ (2009). The same order of magnitude for the errors is used in these studies, even if some large differences may be found at some specific stations. For instance, at Hegyásál (Hungary) station, Chen and Prinn (2006) derive an error of 101.2 ppb while the error given by Bergamaschi et al. (2005) is 26.5 ppb. The errors in our study generally lay between the errors used in these two studies. This means that observational errors used in this study are overall comparable to those currently used in other inversions. However, transport model errors in current inversions are generally not represented explicitly. Indeed, state-of-the-art inversions usually implement parameterizations of model errors, which quantify the misrepresentations of a surface station inside a larger grid box of the chemistry transport model. Chen and Prinn (2006) introduced a “mismatch” error term in the inversion process, aiming to mimic the representation error. This term is computed at each measurement site as the standard deviation of the CH₄ mole fraction

Table 4. Errors (in ppb) contained in **R** matrix of Chen and Prinn (2006), Bergamaschi et al. (2005) and our study at 25 surface stations.

ID	station name	Chen and Prinn (2006)	Bergamaschi et al. (2005)	Our study
ALT	Alert, Nunavut, Canada	6.5	5.4	6.0
ZEP	Ny-Alesund, Svalbard, Spitsbergen	13.3	6.8	9.3
BRW	Barrow, Alaska, USA	21.9	12.2	13.7
BAL	Baltic Sea, Poland	30.1	14.8	27.0
CBA	Cold Bay, Alaska, USA	8.7	10.8	10.7
MHD	Mace Head, Ireland	15.4	21.0	11.9
HUN	Hegyatsal, Hungary	101.2	26.5	41.0
LEF	Park Falls, Wisconsin, USA	21.9	13.0	22.8
BSC	Black Sea, Constanta, Romania	46.4	41.9	43.1
KZM	Plateau Assy, Kazakhstan	22.4	15.3	19.3
NWR	Niwot Ridge, Colorado, USA	16.3	8.3	19.2
UTA	Wendover, Utah, USA	27.7	13.2	20.7
TAP	Tae-ahn Peninsula, Republic of Korea	54.9	33.1	40.3
WLG	Mt. Waliguan, Peoples Republic of China	22.5	17.5	15.2
BME	St. Davis Head, Bermuda	17.5	11.5	18.9
WIS	Sede Boker, Negev Desert, Israel	17.8	13.6	23.9
ASK	Assekrem, Algeria	11.2	5.7	7.7
MLO	Mauna Loa, Hawaii, USA	6.5	9.3	10.8
KUM	Cape Kumukahi, Hawaii, USA	10.6	8.5	10.0
RPB	Ragged Point, Barbados	5.5	8.9	10.7
ASC	Ascension Island	5.8	6.4	5.1
SMO	Cape Matatula, Tutuila, American Samoa	4.9	7.6	7.9
CGO	Cape Grim, Tasmania, Australia	5.2	8.9	5.8
SPO	South Pole, Antarctica	7.6	3.0	1.6
Average over all stations		20.9	13.5	15.9

**Fig. 15.** Regional methane estimates for every inversion using TransCom model outputs as synthetic observations in three network configurations. Estimates for seven continental regions (Europe, North America, Asia, South America, Africa, Oceania and Boreal Eurasia) are shown. For every continental region, the first (second and third) column represents the estimates in the NET1 (NET2 and NET3, respectively) configuration.

surrounding the observation site. Bergamaschi et al. (2005), similar to an approach described by Rödenbeck et al. (2003), took into consideration a “mismatch” (or “representativity”) term that is related to spatial and temporal gradients in all the directions. Some other studies approximate transport errors by the variance of observations to take into account the fact that it is difficult for global transport models to properly represent large variations in trace gas concentrations (Bousquet et al., 2006; Geels et al., 2007). Bergamaschi et al. (2010) introduced a term assessing the uncertainty arising from the sub-grid scale variability of the emissions. These approaches, as with the one used in our study, only partly address the question of model and/or forcing errors, confirming that observation errors in methane inversions may be misspecified.

Moreover, in most state-of-the-art inversions, only diagonal terms of **R** are specified when surface observations are assimilated. Nevertheless, both temporal and spatial correlations could also improve the specification of errors and limit the impact of transport errors on the inverted estimates. For instance, we mentioned in Sect. 3.2.2 that the spread of fluxes in Western Europe may be higher in boreal winter due to more frequent and/or intense storms, suggesting a spatial correlation of transport model errors in Western Europe with errors in regions crossed by the storm tracks (the North Atlantic, for example). One could take into consideration

the erroneous representation of the IH transport by including spatial correlations between stations from the Southern Hemisphere (or/and from the Northern Hemisphere). Figure 3 also points out that transport model errors may vary significantly from one season to another depending on seasonal emissions, suggesting that temporal correlations in measurement errors should be included in the measurement uncertainty covariance matrix. However, properly taking correlations into account dramatically slows down the inversion process. Chevallier (2007) proposed, for CO₂ inversions, to inflate variances in order to limit the impact of unaccounted-for correlations on the accuracy of flux estimates as a computationally efficient method for indirectly considering correlations in future methane inversions.

Finally, our study faces some limitations. Firstly, one could question the development of an inverse modelling experiment assimilating synthetic observations in only one inversion model. However, at present, it is difficult to lead an inter-comparison of inverted fluxes with up-to-date methodologies (variational, ensemble methods, etc.) with the many models available in the TransCom-CH₄ experiment, because it would require an inversion framework for each CTM with either an adjoint model (variational) or a large number of inversions (ensemble methods). It could also be debated that by using synthetic observations, the true transport model errors are not properly represented. Indeed, gaps between CH₄ mixing ratios simulated by different CTMs may be different from gaps between observed and simulated CH₄ mixing ratios (Stephens et al., 2007). Here, it is assumed that transport model errors are properly mapped by the large number of CTMs used in this experiment. Finally, the modelling of the different physical processes (advection, convection, turbulent mixing, etc.) and characteristics of the models (resolutions, vertical coordinate systems, meteorological fields contributing to transport model errors are considered all together and cannot be explicitly separated, although there are insights that IH transport differences play an important role here. Additional knowledge given by different sensitivity tests, together with literature on the skill of each CTM in representing these different atmospheric processes, would likely provide enough information to separate the specific contributions to overall transport model errors of forcing errors and model errors.

5 Conclusions

A modelling exercise, based on a variational inversion, is presented to quantify the impact of transport model errors on methane emission estimates derived by inverse modelling.

Synthetic observations are created from 10 CTMs that participated in the TransCom-CH₄ experiment and are used to constrain one atmospheric inversion framework with a common set-up. Therefore, inversions are only distinguished by the different simulated atmospheric transport, generating dif-

ferent synthetic observational datasets. The spread between the inverted emission estimates shows that transport forcing and model errors have a significant impact on CH₄ flux estimates. The range in global fluxes derived in the inversions is 5 % (27 Tg yr⁻¹). Ranges of 23 to 48 % are obtained in the fluxes derived at regional scales, and up to 150 % at the model grid-scale. Over the continents, patterns of emissions can be very different, depending on the region and on the model used to generate synthetic observations. Consequently, our results show that transport model errors impact significantly the inverted methane budget at all scales, with an increasing impact when going from global to smaller scales.

The need to improve chemical transport models in order to improve inverse flux estimates by inverse modelling has been highlighted recently (Chevallier et al., 2010; Houweling et al., 2010; Saito et al., 2013). For instance, Saito et al. (2013) give some indications for the future development of more accurate CTMs by improving the modelling of inter-hemispheric transport in particular. Indeed, they show that the models with larger vertical gradients, coupled with slower horizontal transport, exhibit greater CH₄ inter-hemispheric gradients in the lower troposphere. In LMDZ-SACS, which has relatively low inter-hemispheric exchange time (Patra et al., 2011), ongoing efforts are being made to improve the representation of vertical gradients by increasing the vertical resolution and by improving the modelling of physical processes in the planetary boundary layer.

The misrepresentation of transport model errors in methane inversions can exacerbate these modelling issues. Consequently, improved formulations of the observation covariance matrix **R**, taking more into account more fully the transport model errors in order to mitigate their impacts on the estimated methane fluxes, have to be addressed in future inversions.

Acknowledgements. This work is supported by DGA (Direction Générale de l'Armement) and by CEA (Centre à l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives). The research leading to the IFS results has received funding from the European Community's Seventh Framework Programme (FP7 THEME [SPA.2011.1.5-02]) under grant agreement n. 283576 in the context of the MACC-II project (Monitoring Atmospheric Composition and Climate – Interim Implementation). The contribution by the LLNL authors was prepared under Contract DE-AC52-07NA27344, with different parts supported by the IMPACTS project funded by the US DOE (BER) and project (07-ERD-064) funded by the LDRD program at LLNL. The TRANSCOM community is to be thanked for sustained efforts on transport model studies since 1993. We thank two anonymous reviewers for critical evaluation and providing very helpful comments and suggestions for improving this article.

Edited by: C. Gerbig



The publication of this article
is finance by CNRS-INSU.

References

- Allan, W., Struthers, H., and Lowe, D. C.: Methane carbon isotope effects caused by atomic chlorine in the marine boundary layer: Global model results compared with Southern Hemisphere measurements, *J. Geophys. Res.*, 112, D04306, doi:10.1029/2006JD007369, 2007.
- Andreae, M. O. and Merlet, P.: Emission of trace gases and aerosols from biomass burning, *Global Biogeochem. Cy.*, 15, 955–966, doi:10.1029/2000GB001382, 2001.
- Arakawa, A. and Schubert, W.: Interaction of a cumulus cloud ensemble with the large-scale environment, Part I, *J. Atmos. Sci.*, 31, 674–701, doi:10.1175/1520-0469(1974)031<0674:IOACCE>2.0.CO;2, 1974.
- Aydin, M., Verhulst, K. R., Saltzman, E. S., Battle, M. O., Montzka, S. A., Blake, D. R., Tang, Q., and Prather, M. J.: Recent decreases in fossil-fuel emissions of ethane and methane derived from fir air, *Nature*, 476, 198–201, doi:10.1038/nature10352, 2011.
- Baker, D. F., Law, R. M., Gurney, K. R., Rayner, P., Peylin, P., Denning, A. S., Bousquet, P., Bruhwiler, L., Chen, Y.-H., Ciais, P., Fung, I. Y., Heimann, M., John, J., Maki, T., Maksyutov, S., Masarie, K., Prather, M., Pak, B., Taguchi, S., and Zhu, Z.: TransCom 3 inversion intercomparison: Impact of transport model errors on the interannual variability of regional CO₂ fluxes, 1988–2003, *Global Biogeochem. Cy.*, 20, GB1002, doi:10.1029/2004GB002439, 2006.
- Bechtold, P., Jung, T., Doblas-Reyes, F., Leutbecher, M., Rodwell, M. J., Vitart, F., and Balsamo, G.: Advances in simulating atmospheric variability with the ECMWF model: From synoptic to decadal time-scales, *Q. J. Roy. Meteorol. Soc.*, 1337–1351, doi:10.1002/qj:289, 2008.
- Belikov, D., Maksyutov, S., Miyasaka, T., Saeki, T., Zhuravlev, R., and Kiryushov, B.: Mass-conserving tracer transport modelling on a reduced latitude-longitude grid with NIES-TM, *Geosci. Model Dev.*, 4, 207–222, doi:10.5194/gmd-4-207-2011, 2011.
- Belikov, D. A., Maksyutov, S., Krol, M., Fraser, A., Rigby, M., Bian, H., Agusti-Panareda, A., Bergmann, D., Bousquet, P., Cameron-Smith, P., Chipperfield, M. P., Fortems-Cheiney, A., Gloor, E., Haynes, K., Hess, P., Houweling, S., Kawa, S. R., Law, R. M., Loh, Z., Meng, L., Palmer, P. I., Patra, P. K., Prinn, R. G., Saito, R., and Wilson, C.: Off-line algorithm for calculation of vertical tracer transport in the troposphere due to deep convection, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 1093–1114, doi:10.5194/acp-13-1093-2013, 2013.
- Bergamaschi, P., Krol, M., Dentener, F., Vermeulen, A., Meinhardt, F., Graw, R., Ramonet, M., Peters, W., and Dlugokencky, E. J.: Inverse modelling of national and European CH₄ emissions using the atmospheric zoom model TM5, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 2431–2460, doi:10.5194/acp-5-2431-2005, 2005.
- Bergamaschi, P., Krol, M., Meirink, J. F., Dentener, F., Segers, A., van Aardenne, J., Monni, S., Vermeulen, A. T., Schmidt, M., Ramonet, M., Yver, C., Meinhardt, F., Nisbet, E. G., Fisher, R. E., O'Doherty, S., and Dlugokencky, E. J.: Inverse modeling of European CH₄ emissions 2001–2006, *J. Geophys. Res.*, 115, D22309, doi:10.1029/2010JD014180, 2010.
- Bian, H., Kawa, S. R., Chin, M., Pawson, S., Zhu, Z., Rasch, P., and Wu, S.: A test of sensitivity to convective transport in a global atmospheric CO₂ simulation, *Tellus B*, 58, 463–475, doi:10.1111/j.1600-0889.2006.00212.x, 2006.
- Bousquet, P., Ciais, P., Miller, J. B., Dlugokencky, E. J., Hauglustaine, D. A., Prigent, C., Van der Werf, G. R., Peylin, P., Brunke, E.-G., Carouge, C., Langenfelds, R. L., Lathière, J., Papa, F., Ramonet, M., Schmidt, M., Steele, L. P., Tyler, S. C., and White, J.: Contribution of anthropogenic and natural sources to atmospheric methane variability, *Nature*, 443, 439–443, doi:10.1038/nature05132, 2006.
- Bousquet, P., Ringeval, B., Pison, I., Dlugokencky, E. J., Brunke, E.-G., Carouge, C., Chevallier, F., Fortems-Cheiney, A., Frankenberg, C., Hauglustaine, D. A., Krummel, P. B., Langenfelds, R. L., Ramonet, M., Schmidt, M., Steele, L. P., Szopa, S., Yver, C., Viovy, N., and Ciais, P.: Source attribution of the changes in atmospheric methane for 2006–2008, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 3689–3700, doi:10.5194/acp-11-3689-2011, 2011.
- Chen, Y.-H. and Prinn, R. G.: Estimation of atmospheric methane emissions between 1996 and 2001 using a three-dimensional global chemical transport model, *J. Geophys. Res.*, 111, 1–25, doi:10.1029/2005JD006058, 2006.
- Chevallier, F., Fisher, M., Peylin, P., Serrar, S., Bousquet, P., Bréon, F.-M., Chédin, A., and Ciais, P.: Inferring CO₂ sources and sinks from satellite observations: Method and application to TOVS data, *J. Geophys. Res.*, 110, 1–13, doi:10.1029/2005JD006390, 2005.
- Chevallier, F.: Impact of correlated observation errors on inverted CO₂ surface fluxes from OCO measurements, *Geophys. Res. Lett.*, 34, L24804, doi:10.1029/2007GL030463, 2007.
- Chevallier, F., Feng, L., Bösch, H., Palmer, P. I., and Rayner, P. J.: On the impact of transport model errors for the estimation of CO₂ surface fluxes from GOSAT observations, *Geophys. Res. Lett.*, 37, L21803, doi:10.1029/2010GL044652, 2010.
- Chipperfield, M. P.: New version of the TOMCAT/SLIMCAT off-line chemical transport model: Intercomparison of stratospheric tracer experiments, *Q. J. Roy. Meteorol. Soc.*, 132, 1179–1203, doi:10.1256/qj.05.51, 2006.
- Corbin, K. D. and Law, R. M.: Extending atmospheric CO₂ and tracer capabilities in ACCESS, CAWCR Technical Report No. 035, The Centre for Australian Weather and Climate Research, ISBN: 978-1-921826-177, Aspendale, 2011.
- Denman, K. L., Marquis, M., Averyt, K. B., and Kingdom, U.: Couplings Between Changes in the Climate System and Biogeochemistry, The Physical Basis of Climate Change, Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the IPCC, edited by: Solomon, S., Qin, D., Manning, M., Chen, Z., Marquis, M., Averyt, K. B., Tignor, M., and Miller, H. L., Cambridge University Press, Cambridge, UK and New York, NY, 500–587, USA.
- Denning, A. S., Holzer, M., Gurney, K. R., Heimann, M., Law, R. M., Rayner, P. J., Fung, I. Y., Fan, S.-M., Taguchi, S., Friedlingstein, P., Balkanski, Y., Taylor, J., Maiss, M., and Levin, I.: Three-dimensional transport and concentration of SF₆, A model intercomparison study (TransCom 2), *Tellus B*, 51, 266–297, doi:10.1034/j.1600-0889.1999.00012.x, 1999.

- Dlugokencky, E. J., Nisbet, E. G., Fisher, R., and Lowry, D.: Global atmospheric methane: budget, changes and dangers, *Philos. T. Roy. Soc. A*, 369, 2058–2072, doi:10.1098/rsta.2010.0341, 2011.
- EDGAR-v4.2 – Emission Database for Global Atmospheric Research (EDGAR), JRC/PBL (Joint Research Center of the European Commission/Netherlands Environmental Assessment Agency): release version 4.2, <http://edgar.jrc.ec.europa.eu> (last access: September 2013), 2011.
- Emmons, L. K., Walters, S., Hess, P. G., Lamarque, J.-F., Pfister, G. G., Fillmore, D., Granier, C., Guenther, A., Kinnison, D., Laepple, T., Orlando, J., Tie, X., Tyndall, G., Wiedinmyer, C., Baughcum, S. L., and Kloster, S.: Description and evaluation of the Model for Ozone and Related chemical Tracers, version 4 (MOZART-4), *Geosci. Model Dev.*, 3, 43–67, doi:10.5194/gmd-3-43-2010, 2010.
- Engelen, R. J., Denning, A. S., and Gurney, K. R.: On error estimation in atmospheric CO₂ inversions, *J. Geophys. Res.*, 107, 4635, doi:10.1029/2002JD002195, 2002.
- Errico, R.: What is an adjoint model?, *B. Am. Meteorol. Soc.*, 78, 2577–2591, 1997.
- Etheridge, D., Pearman, G., and Fraser, P.: Changes in tropospheric methane between 1841 and 1978 from a high accumulation rate Antarctic ice core, *Tellus B*, 44, 282–294, doi:10.1034/j.1600-0889.1992.t01-3-00006.x, 1992.
- Fiore, A. M., Jacob, D. J., Field, B. D., Streets, D. G., Fernandes, S. D., and Jang, C.: Linking ozone pollution and climate change: The case for controlling methane, *Geophys. Res. Lett.*, 78, 2577–2591, doi:10.1029/2002GL015601, 2002.
- Fraser, A., Miller, C. C., Palmer, P. I., Deutscher, N. M., Jones, N. B., and Griffith, D. W. T.: The Australian methane budget: Interpreting surface and train-borne measurements using a chemistry transport model, *J. Geophys. Res.*, 116, D20306, doi:10.1029/2011JD015964, 2011.
- Geels, C., Gloor, M., Ciais, P., Bousquet, P., Peylin, P., Vermeulen, A. T., Dargaville, R., Aalto, T., Brandt, J., Christensen, J. H., Frohn, L. M., Haszpra, L., Karstens, U., Rödenbeck, C., Ramonet, M., Carboni, G., and Santaguida, R.: Comparing atmospheric transport models for future regional inversions over Europe – Part 1: mapping the atmospheric CO₂ signals, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 3461–3479, doi:10.5194/acp-7-3461-2007, 2007.
- Gent, P., Yeager, S., Neale, R., Levis, S., and Bailey, D.: Improvements in a half degree atmosphere/land version of the CCSM, *Clim. Dynam.*, 34, 819–833, doi:10.1007/s00382-009-0614-8, 2010.
- Gerbig, C., Körner, S., and Lin, J. C.: Vertical mixing in atmospheric tracer transport models: error characterization and propagation, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 591–602, doi:10.5194/acp-8-591-2008, 2008.
- GLOBALVIEW-CH4: Cooperative Atmospheric Data Integration Project – Methane, also available on Internet via anonymous FTP to <ftp.cmdl.noaa.gov>, Path: [cg/ch4/GLOBALVIEW](ftp://ftp.cmdl.noaa.gov/cg/ch4/GLOBALVIEW), CD-ROM, NOAA ESRL, Boulder, Colorado, 2009.
- Gloor, M., Fan, S.-M., Pacala, S., Sarmiento, J., and Ramonet, M.: A model-based evaluation of inversions of atmospheric transport, using annual mean mixing ratios, as a tool to monitor fluxes of nonreactive trace substances like CO₂ on a continental scale, *J. Geophys. Res.*, 104, 14245, doi:10.1029/1999JD900132, 1999.
- Gurney, K. R., Law, R. M., Denning, A. S., Rayner, P. J., Baker, D., Bousquet, P., Bruhwiler, L., Chen, Y.-H., Ciais, P., Fan, S., and Fung, I. Y.: Towards robust regional estimates of CO₂ sources and sinks using atmospheric transport models, *Nature*, 415, 626–630, doi:10.1038/415626a, 2002.
- Hein, R., Crutzen, P. J., and Heimann, M.: An inverse modeling approach to investigate the global atmospheric methane cycle, *Global Biogeochemical Cycles*, 11, 43, doi:10.1029/96GB03043, 1997.
- Holtlag, A. A. M. and Boville, B. A.: Local versus nonlocal boundary-layer diffusion in a global climate model, *J. Climate*, 6, 1825–1842, doi:10.1175/1520-0442(1993)006<1825:LVNBLD>2.0.CO;2, 1993.
- Holtlag, A. A. M. and Moeng, C.-H.: Eddy diffusivity and countergradient transport in the convective atmospheric boundary layer, *Journal of Atmospheric Sciences*, 48, 1690–1698, doi:10.1175/1520-0469(1991)048%3C1690:EDACTI%3E2.0.CO;2, 1991.
- Hortal, M.: The development and testing of a new two-time-level semi-Lagrangian scheme (SETTLES) in the ECMWF forecast model, *Q. J. Roy. Meteorol. Soc.*, 2, 1671–1687, doi:10.1002/qj.200212858314, 2002.
- Hourdin, F. and Armengaud, A.: The use of finite-volume methods for atmospheric advection of trace species, Part I: Test of various formulations in a general circulation model, *Mon. Weather Rev.*, 127, 822–837, doi:10.1175/1520-0493(1999)127%3C0822:TUOFVM%3E2.0.CO;2, 1999.
- Hourdin, F., Musat, I., Bony, S., Braconnot, P., Codron, F., Dufresne, J.-L., Fairhead, L., Filiberti, M.-A., Friedlingstein, P., Grandpeix, J.-Y., Krinner, G., LeVan, P., Li, Z.-X., and Lott, F.: The LMDZ4 general circulation model: climate performance and sensitivity to parametrized physics with emphasis on tropical convection, *Clim. Dynam.*, 27, 787–813, doi:10.1007/s00382-006-0158-0, 2006.
- Houweling, S., Kaminski, T., Dentener, F., Lelieveld, J., and Heimann, M.: Inverse modeling of methane sources and sinks using the adjoint of a global transport model, *J. Geophys. Res.*, 104, 26137, doi:10.1029/1999JD900428, 1999.
- Houweling, S., Aben, I., Breon, F.-M., Chevallier, F., Deutscher, N., Engelen, R., Gerbig, C., Griffith, D., Hungershofer, K., Macatangay, R., Marshall, J., Notholt, J., Peters, W., and Serrar, S.: The importance of transport model uncertainties for the estimation of CO₂ sources and sinks using satellite measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 9981–9992, doi:10.5194/acp-10-9981-2010, 2010.
- Houweling, S., Badawy, B., and Baker, D.: Iconic CO₂ time series at risk, *Science*, 337, 1038–1040, doi:10.1126/science.337.6098.1038-b, 2012.
- Kai, F. M., Tyler, S. C., Randerson, J. T., and Blake, D. R.: Reduced methane growth rate explained by decreased Northern Hemisphere microbial sources, *Nature*, 476, 194–197, doi:10.1038/nature10259, 2011.
- Kaminski, T., Rayner, P. J., Heimann, M., and Enting, I. G.: On aggregation errors in atmospheric transport inversions, *J. Geophys. Res.*, 106, 4703, doi:10.1029/2000JD900581, 2001.
- Kawa, S. R., Erickson III, D. J., Pawson, S., and Zhu, Z.: Global CO₂ transport simulations using meteorological data from the NASA data assimilation system, *J. Geophys. Res.*, 109, D18312, doi:10.1029/2004JD004554, 2004.

- Kirschke, S., Bousquet, P., Ciais, P., Saunoy, M., Bergamaschi, P., Bergmann, D., Bruhwiler, L., Cameron-Smith, P., Canadell, J. G., Castaldi, S., Chevallier, F., Dlugokencky, E. J., Feng, L., Fraser, A., Heimann, M., Hodson, E. L., Houweling, S., Josse, B., Lamarque, J.-F., Le Quère, C., Naik, V., Palmer, P. I., Pison, I., Plummer, D., Poulter, B., Ringeval, B., Santini, M., Schmidt, M., Shindell, D. T., Spahni, R., Strode, S. A., Sudo, K., Szopa, S., van der Werf, G. R., Voulgarakis, A., vvan Weele, M., Williams, J. E., and Zeng, G.: Three decades of methane sources and sinks: budgets and variations, *Nat. Geosci.*, 6, 813–823, doi:10.1038/ngeo1955, 2013.
- Köhler, M., Ahlgrimm, M., and Beljaars, A.: Unified treatment of dry convective and stratocumulus-topped boundary layers in the ECMWF model, *Q. J. Roy. Meteorol. Soc.*, 137, 43–57, doi:10.1002/qj.713, 2011.
- Krol, M., Houweling, S., Bregman, B., van den Broek, M., Segers, A., van Velthoven, P., Peters, W., Dentener, F., and Bergamaschi, P.: The two-way nested global chemistry-transport zoom model TM5: algorithm and applications, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 417–432, doi:10.5194/acp-5-417-2005, 2005.
- Laval, K., Sadourny, R., and Serafini, Y.: Land surface processes in a simplified general circulation model, *Geophys. Astrophys. Fluid Dyn.*, 17, 129–150, 1981.
- Law, R., Rayner, P., Denning, A. S., Erickson, D., Fung, I. Y., Heimann, M., Piper, S. C., Ramonet, M., Taguchi, S., Taylor, J. A., Trudinger, C. M., and Watterson, I. G.: Variations in modeled atmospheric transport of carbon dioxide and the consequences for CO₂ inversions, *Global Biogeochem. Cy.*, 10, 783–796, doi:10.1029/96GB01892, 1996.
- Law, R. M., Rayner, P. J., Steele, L. P., and Enting, I. G.: Data and modelling requirements for CO₂ inversions using high-frequency data, *Tellus B*, 55, 512–521, doi:10.1034/j.1600-0889.2003.00029.x, 2002.
- Law, R. M., Kowalczyk, E. A., and Wang, Y.-P.: Using atmospheric CO₂ data to assess a simplified carbon-climate simulation for the 20th century, *Tellus B*, 58, 427–437, doi:10.1111/j.1600-0889.2006.00198.x, 2006.
- Leer, B. V.: Towards the ultimate conservative difference scheme, IV. A new approach to numerical convection, *J. Comput. Phys.*, 23, 276–299, doi:10.1016/0021-9991(77)90095-X, 1977.
- Levin, I., Veidt, C., Vaughn, B. H., Brailsford, G., Bromley, T., Heinz, R., Lowe, D., Miller, J. B., Poß, C., and White, J. W. C.: No inter-hemispheric $\delta^{13}\text{C}_{\text{CH}_4}$ trend observed, *Nature*, 486, 3–4, doi:10.1038/nature11175, 2012.
- Lin, J. C., and Gerbig, C.: Accounting for the effect of transport errors on tracer inversions, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L01802, doi:10.1029/2004GL021127, 2005.
- Lin, S. and Rood, R.: Multidimensional flux-for semi-Lagrangian transport schemes, *Mon. Weather Rev.*, 124, 2046–2070, doi:10.1175/1520-0493(1996)124<2046:MFFSLT>2.0.CO;2, 1996.
- Lock, A., Brown, A., and Bush, M.: A new boundary layer mixing scheme, Part I: Scheme description and single-column model tests, *Monthly weather review*, 3187–3199, doi:10.1175/1520-0493(2000)128<3187:ANBLMS>2.0.CO;2, 2000.
- Louis, J.: A parametric model of vertical eddy fluxes in the atmosphere, *Bound.-Lay. Meteorol.*, 7, 187–202, doi:10.1007/BF00117978, 1979.
- Meirink, J. F., Bergamaschi, P., and Krol, M. C.: Four-dimensional variational data assimilation for inverse modelling of atmospheric methane emissions: method and comparison with synthesis inversion, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 6341–6353, doi:10.5194/acp-8-6341-2008, 2008.
- Montzka, S. A., Dlugokencky, E. J., and Butler, J. H.: Non-CO₂ greenhouse gases and climate change, *Nature*, 476, 43–50, doi:10.1038/nature10322, 2011.
- Patra, P. K., Takigawa, M., Ishijima, K., Choi, B.-C., Cunnold, D., Dlugokencky, E. J., Fraser, P., Gomez-Pelaez, A. J., Goo, T.-Y., Kim, J.-S., Krummel, P., Langenfelds, R., Meinhardt, F., Mukai, H., O'Doherty, S., Prinn, R. G., Simmonds, P., Steele, P., Tohjima, Y., Tsuboi, K., Uhse, K., Weiss, R., Worthy, D., and Nakazawa, T.: Growth Rate, Seasonal, Synoptic, Diurnal Variations and Budget of Methane in the Lower Atmosphere, *J. Meteorol. Soc. Jpn.*, 87, 635–663, doi:10.2151/jmsj.87.635, 2009.
- Patra, P. K., Houweling, S., Krol, M., Bousquet, P., Belikov, D., Bergmann, D., Bian, H., Cameron-Smith, P., Chipperfield, M. P., Corbin, K., Fortems-Cheiney, A., Fraser, A., Gloor, E., Hess, P., Ito, A., Kawa, S. R., Law, R. M., Loh, Z., Maksyutov, S., Meng, L., Palmer, P. I., Prinn, R. G., Rigby, M., Saito, R., and Wilson, C.: TransCom model simulations of CH₄ and related species: linking transport, surface flux and chemical loss with CH₄ variability in the troposphere and lower stratosphere, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 12813–12837, doi:10.5194/acp-11-12813-2011, 2011.
- Peylin, P., Rayner, P. J., Bousquet, P., Carouge, C., Hourdin, F., Heinrich, P., Ciais, P., and AEROCARB contributors: Daily CO₂ flux estimates over Europe from continuous atmospheric measurements: 1, inverse methodology, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 3173–3186, doi:10.5194/acp-5-3173-2005, 2005.
- Pickett-Heaps, C. A., Jacob, D. J., Wecht, K. J., Kort, E. A., Wofsy, S. C., Diskin, G. S., Worthy, D. E. J., Kaplan, J. O., Bey, I., and Drevet, J.: Magnitude and seasonality of wetland methane emissions from the Hudson Bay Lowlands (Canada), *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 3773–3779, doi:10.5194/acp-11-3773-2011, 2011.
- Pison, I., Bousquet, P., Chevallier, F., Szopa, S., and Hauglustaine, D.: Multi-species inversion of CH₄, CO and H₂ emissions from surface measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 5281–5297, doi:10.5194/acp-9-5281-2009, 2009.
- Prather, M.: Numerical advection by conservation of second-order moments, *J. Geophys. Res.*, 91, 6671–6681, doi:10.1029/JD091iD06p06671, 1986.
- Prinn, R. G., Weiss, R. F., Fraser, P. J., Simmonds, P. G., Cunnold, D. M., Alyea, F. N., O'Doherty, S., Salameh, P., Miller, B. R., Huang, J., Wang, R. H. J., Hartley, D. E., Harth, C., Steele, L. P., Sturrock, G., Midgley, P. M., and McCulloch, A.: A history of chemically and radiatively important gases in air deduced from ALE/GAGE/AGAGE, *J. Geophys. Res.*, 105, 17751–17792, doi:10.1029/2000JD900141, 2000.
- Rasch, P. and Kristjánsson, J.: A comparison of the CCM3 model climate using diagnosed and predicted condensate parameterizations, *J. Climate*, 11, 1587–1614, doi:10.1175/1520-0442(1998)011<1587:ACOTCM>2.0.CO;2, 1998.
- Rigby, M., Prinn, R. G., Fraser, P. J., Simmonds, P. G., Langenfelds, R. L., Huang, J., Cunnold, D. M., Steele, L. P., Krummel, P. B., Weiss, R. F., O'Doherty, S., Salameh, P. K., Wang, H. J., Harth, C. M., Mühle, J., and Porter, L. W.: Renewed growth of atmospheric methane, *Geophys. Res. Lett.*, 35, L22805, doi:10.1029/2008GL036037, 2008.

- Rödenbeck, C., Houweling, S., Gloor, M., and Heimann, M.: CO₂ flux history 1982–2001 inferred from atmospheric data using a global inversion of atmospheric transport, *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 1919–1964, doi:10.5194/acp-3-1919-2003, 2003.
- Rotman, D. A.: IMPACT, the LLNL 3-D global atmospheric chemical transport model for the combined troposphere and stratosphere: Model description and analysis of ozone and other trace gases, *J. Geophys. Res.*, 109, D04303, doi:10.1029/2002JD003155, 2004.
- Russell, G. and Lerner, J.: A new finite-differencing scheme for the tracer transport equation, *J. Appl. Meteorol.*, 20, 1483–1498, doi:10.1175/1520-0450(1981)020<1483:ANFDSF>2.0.CO;2, 1981.
- Saito, R., Patra, P., Sweeney, C., Machida, T., Krol, M., Houweling, S., Bousquet, P., Agustí-panareda, A., Belikov, D., Bergmann, D., Bian, H., Cameron-Smith, P., Chipperfield, M., Fortems-Cheney, A., Fraser, A., Gatti, M., Gloor, E., Hess, P., Kawa, S., Law, R., Locatelli, R., Loe, Z., Maksyutov, S., Meng, L., Miller, J., Palmer, P., Prinn, R., Rigby, M., and Wilson, C.: TransCom model simulations of methane: comparison of vertical profile with in situ aircraft measurements, *J. Geophys. Res.*, 118, 3891–3904, 2013.
- Simpson, I. J., Sulbaek Andersen, M. P., Meinardi, S., Bruhwiler, L., Blake, N. J., Helmig, D., Rowland, F. S., and Blake, D. R.: Long-term decline of global atmospheric ethane concentrations and implications for methane, *Nature*, 488, 490–494, doi:10.1038/nature11342, 2012.
- Spahni, R., Chappellaz, J., Stocker, T. F., Loulergue, L., Hausamann, G., Kawamura, K., Flückiger, J., Schwander, J., Raynaud, D., Masson-Delmotte, V., and Jouzel, J.: Atmospheric methane and nitrous oxide of the Late Pleistocene from Antarctic ice cores, *Science*, 310, 1317–1321, doi:10.1126/science.1120132, 2005.
- Spivakovsky, C. M., Logan, J. A., Montzka, S. A., Balkanski, Y. J., Foreman-Fowler, M., Jones, D. B. A., Horowitz, L. W., Fusco, A. C., Brenninkmeijer, C. A. M., Prather, M. J., Wofsy, S. C., and McElroy, M. B.: Three-dimensional climatological distribution of tropospheric OH: Update and evaluation, *J. Geophys. Res.*, 105, 8931, doi:10.1029/1999JD901006, 2000.
- Stephens, B. B., Gurney, K. R., Tans, P. P., Sweeney, C., Peters, W., Bruhwiler, L., Ciais, P., Ramonet, M., Bousquet, P., Nakazawa, T., Aoki, S., Machida, T., Inoue, G., Vinnichenko, N., Lloyd, J., Jordan, A., Heimann, M., Shibistova, O., Langenfelds, R. L., Steele, L. P., Francey, R. J., and Denning, A. S.: Weak northern and strong tropical land carbon uptake from vertical profile of atmospheric CO₂, *Science*, 316, 1732–1735, doi:10.1126/science.1137004, 2007.
- Taguchi, S., Law, R. M., Rödenbeck, C., Patra, P. K., Maksyutov, S., Zahorowski, W., Sartorius, H., and Levin, I.: TransCom continuous experiment: comparison of ²²²Rn transport at hourly time scales at three stations in Germany, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 10071–10084, doi:10.5194/acp-11-10071-2011, 2011.
- Tarantola, A.: *Inverse Problem Theory*, Society for Industrial and Applied Mathematics, Philadelphia, USA, 2005.
- Tiedtke, M.: A comprehensive mass flux scheme for cumulus parameterization in large-scale models, *Mon. Weather Rev.*, 117, 1779–1800, doi:10.1175/1520-0493(1989)117<1779:ACMFSF>2.0.CO;2, 1989.
- van der Werf, G. R., Randerson, J. T., Giglio, L., Collatz, G. J., Mu, M., Kasibhatla, P. S., Morton, D. C., DeFries, R. S., Jin, Y., and van Leeuwen, T. T.: Global fire emissions and the contribution of deforestation, savanna, forest, agricultural, and peat fire (1997–2009), *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 11707–11735, doi:10.5194/acp-10-11707-2010, 2010.
- Walton, J., MacCracken, M., and Ghan, S.: A global-scale Lagrangian trace species model of transport, transformation, and removal processes, *J. Geophys. Res.*, 93, 8339–8354, doi:10.1029/JD093iD07p08339, 1988.
- Yver, C. E., Pison, I. C., Fortems-Cheiney, A., Schmidt, M., Chevalier, F., Ramonet, M., Jordan, A., Søvde, O. A., Engel, A., Fisher, R. E., Lowry, D., Nisbet, E. G., Levin, I., Hammer, S., Necki, J., Bartyzel, J., Reimann, S., Vollmer, M. K., Steinbacher, M., Aalto, T., Maione, M., Arduini, J., O'Doherty, S., Grant, A., Sturges, W. T., Forster, G. L., Lunder, C. R., Privalov, V., Paramonova, N., Werner, A., and Bousquet, P.: A new estimation of the recent tropospheric molecular hydrogen budget using atmospheric observations and variational inversion, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 3375–3392, doi:10.5194/acp-11-3375-2011, 2011.
- Zhang, G. and McFarlane, N.: Sensitivity of climate simulations to the parameterization of cumulus convection in the Canadian Climate Centre general circulation model, *Atmos.-Ocean*, 33, 407–446, doi:10.1080/07055900.1995.9649539, 1995.

4.4 Etudes complémentaires

4.4.1 Diagnostics sur les erreurs d'observation

Les résultats exposés dans le papier (Section 4.3) montre que les erreurs de transport ont un impact non négligeable sur l'estimation des flux de méthane. Il a été également vu que les erreurs d'observation (incluant les erreurs de transport) sont sous-estimées et/ou mal spécifiées dans les inversions actuelles. En effet, l'état de l'art sur le calcul de ces erreurs montre que les différents processus de transport (advection, mélange dans la couche limite, convection) ne sont pas explicitement pris en compte. Le papier de Desroziers et al. (2005) propose des diagnostics dans l'espace des observations pour vérifier la cohérence des erreurs d'observation utilisées dans l'inversion. Ils montrent que si les erreurs sont correctement spécifiées, la relation $E[\mathbf{d}_a^o(\mathbf{d}_b^o)^T] = \mathbf{R}$ doit être satisfaite, avec $\mathbf{d}_b^o = \mathbf{y}^o - \mathbf{H}\mathbf{x}^b$ et $\mathbf{d}_a^o = \mathbf{y}^o - \mathbf{H}\mathbf{x}^a$. Ainsi, nous avons comparé le rapport entre les erreurs utilisées dans nos inversions (issues de la base de données Globalview ; <http://www.esrl.noaa.gov/gmd/ccgg/globalview/>) et les erreurs diagnostiquées par la méthode de Desroziers et al. (2005) pour les réseaux NET1, NET2 et NET3. Une spécification correcte des erreurs de mesure donnerait potentiellement un diagnostic égal à 1, tandis qu'une sous-estimation des erreurs causerait un diagnostic inférieur à 1.

A l'échelle planétaire, on trouve un diagnostic moyen égal respectivement à 0.61 [0.40-1.47], 0.57 [0.43-1.02] et 0.59 [0.44-0.98] pour NET1, NET2 et NET3. Les chiffres entre crochets donnent la fourchette des valeurs diagnostiquées pour chacune des inversions utilisant les différents jeux de pseudo-observations. A l'exception de quelques inversions, le diagnostic est inférieur à 1 pour les 3 réseaux signifiant que les erreurs utilisées dans nos inversions sont sous-estimées. Ceci confirme que certaines contributions aux erreurs de la matrice \mathbf{R} sont manquantes. De plus, cela implique également qu'un poids trop important est donné à certaines observations, biaisant alors les flux estimés par modélisation inverse.

Néanmoins, il faut garder à l'esprit que la méthode de Desroziers et al. (2005) suit normalement une procédure itérative où la matrice \mathbf{R} ainsi diagnostiquée est utilisée à nouveau dans une inversion et où le processus est réitéré plusieurs fois. Ici, cette méthode serait trop coûteuse et les résultats donnés relèvent seulement de la première itération. Ainsi, le diagnostic nous renseigne plus sur la direction dans laquelle les erreurs d'observation doivent être modifiées (augmenter ou diminuer les erreurs) que sur la valeur réelle de ces erreurs puisque dans ce cas là il faudrait itérer le processus plusieurs fois.

D'une manière générale, plusieurs études se sont récemment intéressées à proposer des méthodes pour estimer les matrices d'erreurs \mathbf{R} et \mathbf{B} à partir des mesures des concentrations atmosphériques (Berchet et al., 2013; Cressot et al., 2014) ou en estimant les paramètres de leurs fonctions de densité de probabilité (Ganesan et al., 2014). Ces méthodes mettent clairement en évidence que le jugement expert ou les méthodes empiriques ont des limites et qu'il est nécessaire de proposer des méthodes permettant d'estimer plus fidèlement les erreurs d'observation des systèmes inverses.

4.4.2 Comparaison de profils verticaux de méthane simulés par différents CTMs avec des mesures avions

J'ai également collaboré dans les travaux de recherche de Saito et al. (2013) ("TransCom model simulations of methane : Comparison of vertical profiles with aircraft measurements") qui présentent une comparaison de profils verticaux de méthane

simulés par différents modèles de chimie-transport avec des mesures avions à 13 sites en Amazonie (Brésil), Mongolie, Sibérie (Russie), aux Etats-Unis et dans l'Océan Pacifique. Douze modèles de chimie-transport (dont LMDz) ont été utilisés et comparés dans cette étude. De manière générale, les profils de méthane mesurés montrent un gradient vertical proche de zéro au dessus de 3 kilomètres dans les régions où la convection est intense (en Amazonie durant toutes les saisons ou dans les régions des hautes latitudes durant les mois d'été seulement). Au contraire, on trouve des concentrations diminuant fortement avec l'altitude dans les régions où les émissions anthropiques sont élevées (Sinton et Harvard Forest (Etats-Unis) ; Surgut (Mongolie)). Dans la suite on s'intéresse aux profils verticaux à 4 sites spécifiques. En effet, la figure 4.1 montre les profils verticaux observés et simulés à quatre sites (SUR : Surgut, Mongolie ; TGC : Sinton, Texas, Etats-Unis ; HAA : Ile de Molokaï, Hawaï, Etats-Unis ; SAN : Santarem, Brésil) pour les périodes janvier-mars et juillet-septembre.

A Surgut (SUR), les concentrations simulées sur la verticale sous-estiment les concentrations observées, ce qui traduit très probablement une sous-estimation des flux de méthane à ce site dans le scénario utilisé dans cette étude. En outre, on remarque une augmentation des concentrations de méthane entre 2-3 et 7-8 km en juillet-septembre. Des niveaux de concentrations aussi élevés dans la haute troposphère, alors que les émissions de méthane ont lieu à la surface seulement, témoignent d'épisodes intenses de convection profonde. LMDz (courbe en bleue tiretée), comme la plupart des modèles, n'est pas capable de reproduire cette caractéristique. Seuls deux modèles (ACTM et CCAM) sont capables de simuler plutôt bien le profil vertical à ce site. A Sinton (TGC), on observe la même caractéristique du profil vertical durant l'été boréal que ce qui a été décrit à Surgut avec une augmentation des concentrations de méthane vers 6 km. Cependant, le gradient vertical des concentrations de méthane en haute troposphère est moins marquée qu'à Surgut. A la surface, la taille des barres horizontales témoigne d'une variabilité très forte en juillet-septembre. En effet, le site de TGC est soit sous l'influence d'un air maritime, caractérisée par de faibles concentrations de méthane, venant du sud-est, soit sous l'influence d'un air concentré en méthane par les fortes émissions ayant lieu sur le pourtour du Golfe du Mexique. La variabilité est moins forte en hiver boréal puisque le vent vient principalement du sud-ouest et le site est plus ou moins constamment sous l'influence des émissions du Mexique ou du sud-ouest des Etats-Unis. De plus, le gradient dans la troposphère est beaucoup plus prononcé en hiver car les épisodes de convection intense sont beaucoup moins fréquents.

Sur l'île de Molokaï (HAA), le profil vertical durant juillet-septembre ne présente aucun gradient proche de la surface. C'est l'une des caractéristiques des sites situés loin de toutes sources importantes de méthane. Cependant, on remarque une augmentation soudaine des concentrations de méthane observées vers 850 hPa. Peu de modèles (Geos-Chem, TM5, IFS et PCTM) sont capables de reproduire ce gradient en milieu de troposphère. Il a été montré que ce signal provient du transport des émissions de méthane depuis l'Asie tempérée. Des tests de sensibilité supplémentaires seraient nécessaires pour déterminer si cette aptitude de certains modèles est dû à la qualité des forçages météorologiques utilisés ou de la représentation du transport dans ces modèles. Durant l'hiver boréal, HAA est impacté par les émissions de l'hémisphère nord ce qui explique le gradient vertical plus prononcé que durant l'été boréal.

A Santarem (SAN), la concentration de méthane décroît très rapidement avec l'altitude dans la basse troposphère, ce qui témoigne de fortes émissions à ce site. Le gradient vertical des profils simulés au dessus de 3 km est peu marqué, ce qui est en cohérence avec de forts mouvements verticaux au niveau de ce site tropical. De plus, on remarque que la dispersion entre les modèles est importante (~ 50 ppb). Bien que les observa-

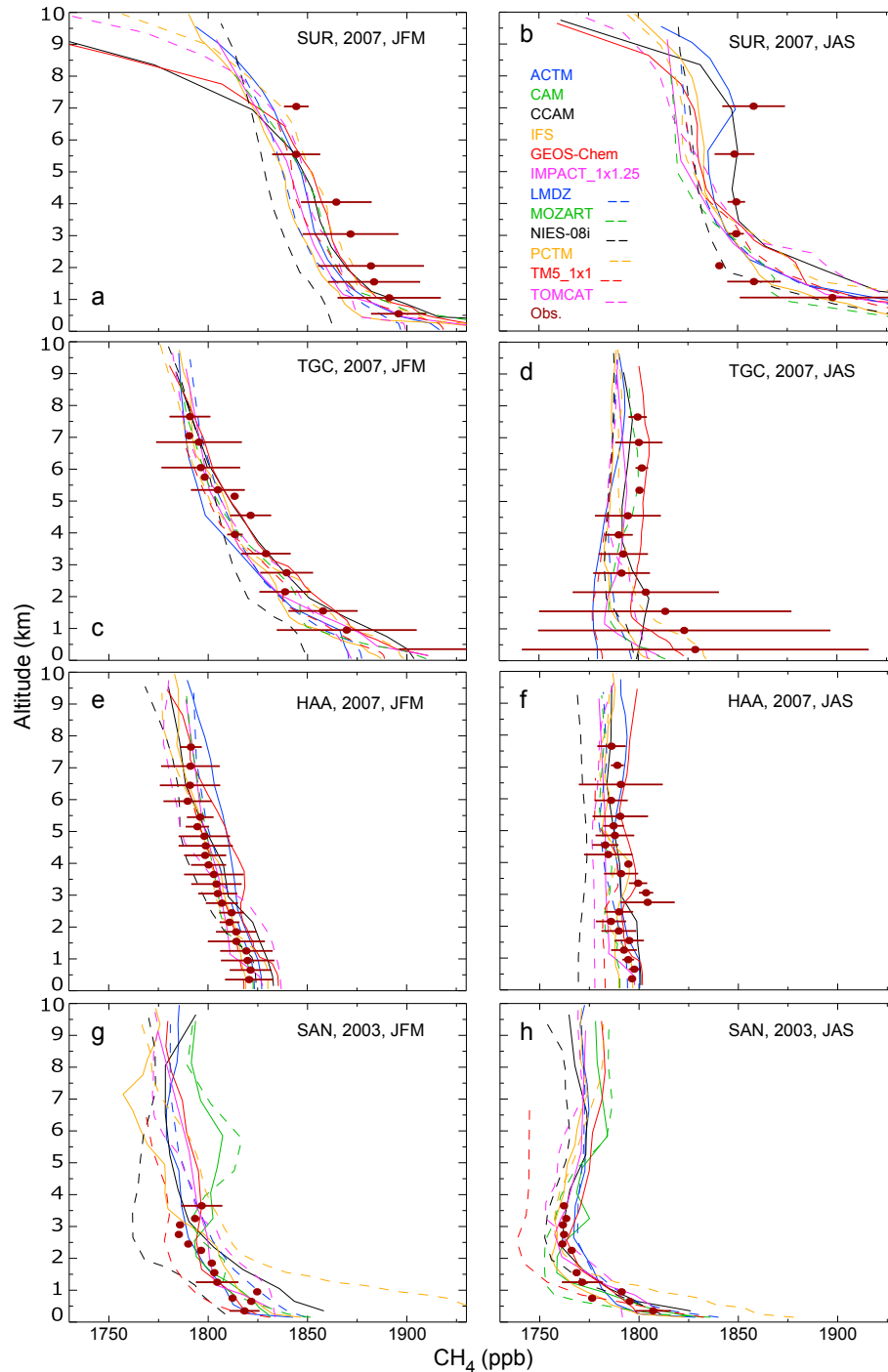


Figure 3. (symbol) Observed and (lines) simulated CH₄ vertical profiles at (top row) SUR, (second row from top) HAA, (third row from top) TGC, and (bottom row) SAN for (left) January–March and (right) July–September. Horizontal bars for the 3 months mean measurements present a 1σ standard deviation. (TGC), the Molskja (HAA), Santarem (SAN), moyennés sur les périodes janvier-mars (colonne de gauche) et juillet-septembre (colonne de droite) pour l'année 2007 (et 2003 à Santarem seulement). Les barres horizontales représentent l'écart-type des observations à chaque altitude. LMDZ est représenté par la courbe bleue tirée de la Atlantique (concentrations basses) ou de la zone de la Méditerranée (concentrations élevées) et southwestern United States. Thus, the concentrations are relatively stable (lower variability), and the average values are higher by about 50 ppb in JFM months than those in the JAS months.

tions ne soient disponibles que jusqu'à 4 km, on note que la différence entre les profils simulés et observés est la plus grande des 4 sites étudiés ici.

En résumé, les différences entre les modèles sont fortes proche de la surface et/ou

(2011) et Locatelli et al. (2013). Pour aller plus loin, une analyse des échanges inter-hémisphériques dans différentes versions de LMDz (augmentation de la résolution verticale, utilisations de nouvelles paramétrisations physiques pour le mélange dans la couche limite) est exposée dans le chapitre 5.

Conclusions du chapitre

Les incertitudes relatives à la modélisation du transport atmosphérique apparaissent de plus en plus comme un facteur limitant pour l'estimation des sources et puits de méthane par modélisation inverse. En effet, il a été montré au cours de ce chapitre que les inversions atmosphériques sont impactées aux différentes échelles spatio-temporelles par les erreurs de transport :

- significativement à l'échelle globale. Les flux de méthane optimisés diffèrent jusqu'à 5% dus aux erreurs de transport.
- fortement à l'échelle continentale. Les incertitudes atteignent, en moyenne, 30%.
- très fortement à l'échelle du modèle. Les incertitudes peuvent atteindre jusqu'à 150%.

En particulier, il a été montré que la version « offline » du modèle LMDz utilisé dans le système inverse PYVAR-LMDz-SACS présentait plusieurs défauts pour représenter fidèlement les concentrations atmosphériques de méthane. La surestimation des échanges entre hémisphères et la sous-estimation de la variabilité synoptique apparaissent comme les deux défauts impactant le plus les inversions atmosphériques utilisant LMDz. La mauvaise représentation des échanges inter-hémisphériques introduit des biais importants dans les estimations des flux de méthane à l'échelle globale, notamment pour le gradient nord/sud des émissions. Les incertitudes relatives à la modélisation de la variabilité synoptique peuvent être importantes et engendrer des flux optimisés plus élevées que réellement, et ce d'autant plus que les erreurs prises en compte dans le processus inverse sont sous-estimées.

A ce stade de la thèse, et compte tenu des défauts identifiés de la version du modèle qui a été utilisée jusqu'à maintenant, il a été décidé de travailler pour mettre en oeuvre une version améliorée du modèle de transport LMDz utilisée dans le système inverse PYVAR-LMDz-SACS. C'est pourquoi, avant de présenter les inversions de méthane pour la période 2006-2012 (chapitre 6), je présente les travaux effectués pour évaluer différentes versions du modèle prenant en compte des développements récents de la physique du modèle.

La modélisation du transport atmosphérique de gaz traces dans LMDz

UNE APPROCHE possible pour limiter l'impact des erreurs de modélisation du transport atmosphérique sur les inversions atmosphériques est d'essayer d'améliorer la représentation du transport atmosphérique. Le modèle de circulation générale de l'atmosphère LMDz que j'ai utilisé jusqu'à présent dans cette thèse a notamment évolué depuis une dizaine d'années. La résolution spatiale a été améliorée et de nouvelles paramétrisations du mélange vertical ont été développées et implémentées mais restent peu testées pour les traceurs. Dans ce chapitre, on se propose d'évaluer les développements faits sur le modèle LMDz en se focalisant sur le transport de gaz traces, dont le méthane.

En préambule, on présente des notions fondamentales sur la modélisation du transport atmosphérique d'espèces traces. Notamment, on détaille les principes fondamentaux de l'équation régissant l'évolution temporelle du transport d'un gaz trace dans l'atmosphère (section 5.1). La suite du chapitre se concentre sur la modélisation du transport atmosphérique dans le modèle LMDz. Les paramétrisations physiques utilisées dans les anciennes et la nouvelle version de LMDz sont décrites dans la section 5.2. Les résultats portant sur les caractéristiques de LMDz pour la modélisation du transport de gaz dans l'atmosphère, qui ont fait l'objet d'une publication dans le journal *Geoscientific Model Development Discussion* : « Atmospheric transport and chemistry of trace gases in LMDz5B : evaluation and implications for inverse modelling » en juillet 2014 et qui sont actuellement en révision pour une publication dans *Geoscientific Model Development*, sont présentés dans les sections suivantes. En effet, la présentation générale de l'étude est exposée dans la section 5.3 tandis que les principaux résultats sont résumés dans la section 5.3.2. Finalement, l'intégralité de la publication est exposée en section 5.4. Des études complémentaires à cette publication se concentrant sur l'évaluation de la simulation de la hauteur de la couche limite (section 5.5.1) et de la concentration atmosphérique de ^{222}Rn (section 5.5.2) par différents modèles (dont les différentes versions de LMDz) à travers deux projets internationaux auxquels j'ai contribué pendant ma thèse (l'expérience TransCom-BLH et le projet InGOS) clôturent ce chapitre.

5.1 L'équation de transport d'une espèce trace dans l'atmosphère

L'évolution temporelle de la concentration, $\frac{\partial c}{\partial t}$, d'un gaz présent en trace dans l'atmosphère varie du fait de plusieurs processus physico-chimiques (voir équation 5.1) : de l'émission, $S_{sources}$, ou de la destruction, P_{uits} , d'une certaine quantité de ce gaz à la surface, de la production ou de la destruction par des réactions chimiques, C_{chimie} , d'une certaine quantité de ce gaz, et du transport de ce gaz dans l'atmosphère, $T_{transport}$.

$$\frac{\partial c}{\partial t} = S_{sources} - P_{uits} + T_{transport} + C_{chimie} \quad (5.1)$$

En pratique, ces différents processus sont simulés l'un à la suite des autres dans les modèles de chimie-transport. Dans ce chapitre, nous nous intéressons plus spécifiquement à la représentation du transport atmosphérique (le terme $T_{transport}$) d'un gaz par les modèles de chimie-transport. L'équation du transport d'une espèce trace passive (inerte chimiquement) et conservative de concentration, c , émise dans l'atmosphère subissant différents processus atmosphériques s'écrit, sous la convention d'Einstein¹, :

$$\frac{\partial c}{\partial t} + v_j \frac{\partial c}{\partial x_j} = 0 \quad (5.2)$$

v_j est la composante du champ de vent selon la direction x_j .

Les mouvements atmosphériques responsables du transport d'une espèce trace dans l'atmosphère peuvent avoir des échelles spatio-temporelles très différentes. Dans les modèles numériques de chimie-climat, il n'est pas possible de représenter explicitement toutes ces échelles. On travaille explicitement jusqu'à une échelle donnée (typiquement avec des mailles de 50 à 500 km de côté) mais on traite la petite échelle de façon statistique. En pratique, c'est la résolution du modèle qui distingue les processus physiques représentés explicitement ou ceux modélisés implicitement par des paramétrisations. On utilise généralement la décomposition de Reynolds pour illustrer la séparation des échelles dans les processus atmosphériques. Sous cette hypothèse, une variable atmosphérique X est décomposée en une valeur représentant sa moyenne d'ensemble, \bar{X} , et une fluctuation turbulente, X' , selon l'équation : $X = \bar{X} + X'$. Ainsi l'équation du transport 5.2 devient :

$$\frac{\partial c}{\partial t} + v_j \frac{\partial c}{\partial x_j} + \frac{\partial \overline{v'_j c'}}{\partial x_j} = 0 \quad (5.3)$$

La variation temporelle de la concentration d'une espèce trace en un point de l'espace, $\frac{\partial c}{\partial t}$, est égale à la somme de l'advection horizontale et verticale de la concentration, $v_j \frac{\partial c}{\partial x_j}$, et de la divergence horizontale et verticale du flux turbulent de la concentration, $\frac{\partial \overline{v'_j c'}}{\partial x_j}$.

De nombreux schémas et méthodes numériques existent pour représenter l'advection. Dans LMDz, un schéma en volumes finis d'ordre deux (van Leer, 1977; Hourdin and Armengaud, 1999) est utilisé. Cependant, au cours de cette thèse, je me suis davantage intéressé à la représentation des processus physiques sous-maille qui sont inclus dans le terme turbulent, $\frac{\partial \overline{v'_j c'}}{\partial x_j}$. Les différentes paramétrisations utilisées et testées dans le modèle LMDz sont décrites dans la section 5.2 et les principaux résultats liés à l'implémentation de ces paramétrisations sur le transport des traceurs dans la couche limite et

1. Un indice répété est un indice muet car il est un indice de sommation : $v_j \frac{\partial c}{\partial x_j} = \sum_{i=1}^n v_i \frac{\partial c}{\partial x_i}$

la troposphère libre sont exposés dans la section 5.3.2 et 5.4. Les résultats concernant l'impact de ces paramétrisations physiques sur les estimations des flux de méthane seront présentés au chapitre 6.

5.2 Les paramétrisations physiques du transport sous-maille dans LMDz

Dans les précédentes versions de LMDz (Li, 1999; Li and Conil, 2003; Hourdin et al., 2006), seules deux échelles spatiales des processus sous-grille étaient paramétrisées dans LMDz :

- une petite échelle relative aux petites fluctuations turbulentes. Les deux schémas utilisés dans les différentes versions de LMDz pour paramétriser cette turbulence de petite échelle sont décrits dans la section 5.2.1.
- une échelle en lien avec les mouvements de plus grandes tailles liés à la convection profonde. Les schémas de convection profonde de Tiedtke (1989) et Emanuel (1991) sont successivement décrits dans la section 5.2.3.

Bien évidemment, d'autres structures de diverses échelles spatio-temporelles participent également au mélange turbulent dans l'atmosphère. C'est le cas, par exemple, de panaches ascendants se développant sous l'effet des forces de flottabilité dont l'extension verticale est comparable à la hauteur de la couche limite. Ces structures cohérentes de la couche limite appelées « thermiques » ont un rôle non négligeable sur le transport atmosphérique au sein de la couche limite. Le modèle du thermique, introduit par Hourdin et al. (2002) pour la couche limite sèche et prolongé par Rio and Hourdin (2008) pour la couche limite humide, est présenté dans la section 5.2.2. Il permet de représenter une échelle intermédiaire, entre l'échelle des petites fluctuations turbulentes et l'échelle de la convection profonde, du mélange atmosphérique, et contribue à un plus grand réalisme dans la représentation du transport.

Le tableau 5.1 résume le détail des paramétrisations physiques utilisées dans les différentes versions de LMDz présentées dans ce manuscrit. LMDz-TD utilise le schéma de Louis (1979) et de Tiedtke (1989) pour représenter respectivement la diffusion verticale turbulente et la convection profonde, tandis que ces deux processus sont respectivement paramétrisés par le schéma de Louis (1979) et de Emanuel (1991) dans LMDz-SP. LMDz-NP se différencie de LMDz-SP par l'implémentation du modèle du thermique (Rio and Hourdin, 2008) et du remplacement du schéma de Louis (1979) par le schéma de Yamada (1983) pour paramétriser la diffusion verticale turbulente. La version de LMDz utilisée dans Chevallier et al. (2005), LMDz-19, utilise les mêmes paramétrisations physiques que LMDz-TD.

Concernant la résolution horizontale et verticale, les versions LMDz-TD, LMDz-SP et LMDz-NP ont subi une nette amélioration comparées à LMDz-19. En effet, ces versions utilisent une résolution horizontale de $3.75^\circ \times 1.875^\circ$ (96 points en longitude et en latitude), alors que la version LMDz-19 utilise 96 points en longitude et 72 points en latitude ($3.75^\circ \times 2.5^\circ$). De plus, la résolution verticale a été fortement améliorée. LMDz-TD, LMDz-SP et LMDz-NP utilisent 39 niveaux verticaux, qui s'opposent aux 19 niveaux verticaux de LMDz-19, pour représenter l'atmosphère entre la surface et 0.5 hPa.

TABLE 5.1: Configurations des différentes versions de LMDz en détaillant les paramétrisations physiques et la résolution utilisées.

	Diffusion Turbulente	Transport non-local	Convection Profonde	Résolution
LMDz-19	Louis (1979)	-	Tiedtke (1989)	$3.75^\circ \times 2.5^\circ$ 19 niveaux
LMDz-TD	Louis (1979)	-	Tiedtke (1989)	$3.75^\circ \times 1.875^\circ$ 39 niveaux
LMDz-SP	Louis (1979)	-	Emanuel (1991)	$3.75^\circ \times 1.875^\circ$ 39 niveaux
LMDz-NP	Yamada (1983)	Rio and Hourdin (2008)	Emanuel (1991)	$3.75^\circ \times 1.875^\circ$ 39 niveaux

5.2.1 La turbulence de couche limite

Dans la couche limite atmosphérique, l'effet de la turbulence est nettement plus important sur la verticale que sur l'horizontale. De plus, l'approche classique pour représenter la turbulence de couche limite est de faire une analogie avec la diffusion moléculaire, qu'elle domine largement dans l'atmosphère jusqu'à environ 100 km d'altitude ([Jacob, 1999](#)). Ainsi, on exprime la composante verticale du flux turbulent d'une quantité transportée proportionnellement au gradient vertical local de la quantité, selon l'équation :

$$\overline{\rho w' c'} = -K_z \frac{\partial c}{\partial z} \quad (5.4)$$

K_z est le coefficient d'échange turbulent. w' et c' sont respectivement les fluctuations turbulentes de la vitesse verticale et de la concentration de l'espèce transportée. ρ est la masse volumique de l'espèce considérée.

Pour fermer le schéma, il est alors nécessaire d'estimer le coefficient K_z . Dans la version transport de LMDz utilisée jusqu'à aujourd'hui dans le système inverse PYVAR, le coefficient de proportionnalité K_z dépend du cisaillement vertical de vent et de la stabilité de l'atmosphère. La formulation complète de ce coefficient peut être trouvée dans la publication de [Laval et al. \(1981\)](#), à partir des travaux de [Louis \(1979\)](#).

Cependant, de la même manière que ce qui a été fait pour l'équation 5.2, on peut appliquer la décomposition de Reynolds aux fluctuations turbulentes et obtenir des équations d'évolution de ces variables. Néanmoins, ces équations font apparaître des termes du troisième ordre et il est alors nécessaire de fermer le schéma au niveau de ces termes. Le schéma de [Yamada \(1983\)](#) fait partie de ces schémas proposant des fermetures à des ordres plus élevés. Il est basé sur l'équation d'évolution de l'énergie cinétique turbulente. C'est cette paramétrisation des processus turbulents de petites échelles qui est proposée dans la version LMDz-NP.

5.2.2 Le transport non-local dans la couche limite : le modèle du thermique

Le développement du modèle du thermique a été motivé pour pallier les déficiences de la diffusion turbulente dans les cas de couches limites convectives. En effet, le transport non-local participe fortement au mélange de la couche limite et il est nécessaire de le représenter pour simuler correctement les caractéristiques de la couche limite. Or, l'approche en diffusion turbulente ne permet pas de représenter certains processus

fréquemment observés dans la couche limite. Par exemple, le signe « - » dans l'équation 5.4 impose que le flux vertical turbulent se fasse contre le gradient de concentration du traceur. Or, il n'est pas impossible d'avoir des flux turbulents remontant le long du gradient. Bien qu'il existe des alternatives à ces problèmes (Deardorff, 1972), il a été petit à petit proposé d'abandonner l'approche en diffusion turbulente pour permettre la représentation des différentes échelles du mélange turbulent agissant dans la couche limite (Stull, 1984; Arakawa and Schubert, 1974).

Dans ce contexte, le modèle du thermique décrit par Hourdin et al. (2002) pour la couche limite sèche et par Rio and Hourdin (2008) pour la couche limite humide a été développé. Il utilise une approche en flux de masse, c'est-à-dire que chaque maille du modèle est divisée en, au moins, deux parties : une partie représentant les ascendances (flux de masse positif) et une partie représentant l'environnement où la vitesse verticale compensatoire (flux de masse négatif) est plus faible. Le thermique étant vu comme un panache ascendant créé par l'action des forces de flottabilité, le transport d'une quantité de traceur par le modèle du thermique est alors réalisé par la somme du transport ascendant généré par le thermique et du transport subsident ayant lieu dans l'environnement.

La version LMDz-NP propose une combinaison de l'approche locale avec la représentation de la turbulence de petite échelle grâce au concept de diffusion turbulente et d'une approche en flux de masse pour représenter le transport non-local dans la couche limite par les thermiques. A contrario, les versions LMDz-TD et LMDz-SP n'utilisent pas de paramétrisations du transport non-local dans la couche limite.

5.2.3 La convection profonde

La convection profonde est un phénomène atmosphérique jouant un rôle fondamental sur la redistribution verticale dans la troposphère de chaleur, d'humidité et de gaz stockés dans les basses couches par des mouvements ascendants de grandes tailles. En effet, le terme « convection profonde » est utilisé lorsqu'on observe des termes convectifs sur l'ensemble de l'épaisseur de la troposphère. De nombreux schémas paramétrisant la convection profonde sont disponibles dans les modèles de chimie-climat, chacun ayant ses propres caractéristiques (Mahowald et al., 1995).

Au cours de ce travail, deux schémas de convection profonde (le schéma de Tiedtke (1989) et le schéma d'Emanuel (1991)) sont utilisés. Ces schémas reposent sur une approche en flux de masse, comme on l'a vu pour le modèle du thermique, pour représenter les courants convectifs ascendants et descendants, aussi bien que les mouvements compensatoires dans l'air environnant.

5.2.3.1 Le schéma de Tiedtke (1989)

Dans le schéma de Tiedtke (1989), on ne considère qu'un seul nuage convectif représenté par un seul courant ascendant moyen saturé. L'entraînement et le déentraînement ont lieu à tous les niveaux entre le niveau de convection libre et le niveau où la flottabilité est nulle. Ce schéma représente également un courant subsident saturé à flottabilité négative qui redescend jusqu'à la base du nuage.

Le schéma de Tiedtke (1989) est utilisé dans de nombreux modèles de chimie-climat avec, généralement, des adaptations apportées au schéma originel. Ici, seul LMDz-TD utilise le schéma de Tiedtke (1989) pour représenter la convection profonde.

5.2.3.2 Le schéma de Emanuel (1991)

La vision pour représenter la convection profonde dans le schéma de Emanuel (1991) est très différente de celle déployée dans le schéma de Tiedtke (1989). En effet, des courants adiabatiques ascendants provenant des premières couches de l'atmosphère et se terminant à leur niveau de flottabilité neutre sont mélangés à chaque niveau avec de l'air de l'environnement. Ainsi, ces mélanges constituent un mélange uniforme de différentes flottabilités. Ces différents mélanges se déplacent vers le haut ou vers le bas (suivant leurs flottabilités respectives) et sont entraînés dans l'environnement lorsqu'ils atteignent leur nouveau niveau de flottabilité neutre. Ce schéma fait donc partie des schémas appelés « episodic mixing and buoyancy sorting scheme » (EMBS).

Contrairement au schéma de Tiedtke (1989) où il y a une seule ascendance mixte, il existe une ascendance adiabatique inviscide et plusieurs ascendances diluées nourries par l'entraînement dans le schéma de Emanuel (1991). De plus, le déentraînement et l'entraînement ont lieu à tous les niveaux.

Le schéma de Emanuel (1991) est utilisé dans les versions LMDz-SP et LMDz-NP avec quelques adaptations (Grandpeix et al., 2004; Grandpeix and Lafore, 2010) comparées à la paramétrisation de référence.

5.2.4 Mise à jour du transport des traceurs dans LMDz

Les procédures traitant du transport de traceurs dans LMDz par le schéma de Emanuel (1991) et le modèle du thermique n'étaient pas mises à jour au début de ce travail. En effet, comme il a été vu sur la figure 3.2, le transport des traceurs dans LMDz est réalisé avec une version débranchée du modèle qui requiert que les variables dynamiques et physiques soient correctement transmises à cette partie du modèle. Les liens existant entre la partie « dynamique », « physique » et « transport » de LMDz ont donc été mis à jour et quelques ajustements ont également été nécessaires pour permettre le transport de gaz traces dans LMDz. A partir de ce travail, les caractéristiques des différentes paramétrisations physiques pour la modélisation du transport de gaz traces dans l'atmosphère ont ainsi pu être étudiées et évaluées, et sont exposées dans la publication présentée dans les sections suivantes.

5.3 Présentation de l'étude sur la modélisation du transport atmosphérique de gaz traces par LMDz

5.3.1 Introduction

Cette étude a pour objectif de présenter une évaluation du transport atmosphérique de gaz traces simulé par LMDz en utilisant de nouvelles paramétrisations physiques pilotant le transport vertical dans la couche limite (diffusion verticale turbulente, mélange par les structures cohérentes de la PBL telles que les thermiques, convection profonde) et en affinant la résolution verticale du modèle (39 niveaux au lieu de 19 dans la version précédente du modèle). L'analyse des résultats s'effectue avec la volonté d'anticiper l'impact des modifications introduites par la nouvelle version de LMDz (LMDz-NP) sur de futures estimations des sources et puits de méthane par inversion atmosphérique (chapitre 6).

Dans un premier temps, les aptitudes des nouvelles paramétrisations à simuler le transport dans la couche limite sont étudiées à travers une comparaison entre une version uni-dimensionnelle de LMDz et une simulation des grands tourbillons (LES,

Large Eddy Simulation). Le transport dans la couche limite est ensuite validé dans une configuration tri-dimensionnelle du modèle grâce à des comparaisons avec des mesures récentes de radon. Une deuxième partie de l'article s'intéresse à l'impact de cette nouvelle version du modèle sur le transport de grande échelle (échanges inter-hémisphériques, échanges stratosphère/troposphère). Finalement, la dernière partie de la publication discute des implications de ces résultats sur de futures estimations des flux de méthane par modélisation inverse utilisant cette version de LMDz.

5.3.2 Principaux résultats

5.3.2.1 Transport dans la couche limite

L'étude des capacités du modèle dans une configuration uni-dimensionnelle de LMDz a permis de mettre en évidence que LMDz-NP (combinaison du schéma d'Emanuel (1991), du modèle des thermiques et du modèle de Yamada (1983)) reproduisait plus fidèlement le cycle diurne de la couche limite modélisé par une simulation aux grands tourbillons (LES, Large Eddy Simulation) dans un cas de convection continentale peu profonde, que les versions antérieures de LMDz (LMDz-TD et LMDz-SP).

Dans une configuration tri-dimensionnelle de LMDz et en comparaison avec des mesures de radon, gaz avec une demi-vie de 3.8 jours traçant le transport dans la couche limite continentale, il est également apparu que LMDz-NP était capable de reproduire les cycles diurnes forts mesurés à des stations localisées proches des émissions grâce à l'apport du modèle des thermiques.

5.3.2.2 Transport de grande échelle

L'impact des nouvelles paramétrisations physiques sur le transport de grande échelle a également été étudié. Ainsi, différentes simulations de la concentration atmosphérique de SF₆, qui est connu pour être un bon traceur du transport de grande échelle, sont comparées. Les anciennes versions de LMDz sont connues pour transporter trop rapidement les traceurs d'un hémisphère à l'autre (Geels et al., 2007; Patra et al., 2011) et de la troposphère à la stratosphère (Patra et al., 2011; Thompson et al., 2014).

Dans ce travail, il a été trouvé que les échanges inter-hémisphériques étaient ralentis dans les versions de LMDz utilisant le schéma de Emanuel (1991) (LMDz-SP et LMDz-NP) pour représenter la convection profonde. Les échanges entre la troposphère et la stratosphère ont également été nettement ralentis dans les versions de LMDz utilisant 39 niveaux sur la verticale contre 19 niveaux dans la version précédente. Seul un impact important du modèle des thermiques sur l'effet correcteur des concentrations (« rectifier effect »), qui est fortement relié au mélange dans la couche limite, a été constaté.

5.3.2.3 Implications pour l'estimation des sources et puits de méthane par modélisation inverse

Ces différents diagnostics du transport dans la couche limite et à grande échelle sont nécessaires pour comprendre et anticiper les éventuels impacts d'une mauvaise représentation des processus de transport sur l'estimation des flux de gaz par modélisation inverse. Il est notamment envisagé que le biais, lié à la surestimation des échanges

inter-hémisphériques, connu dans LMDz-TD (Locatelli et al., 2013) puisse être réduit dans un système inverse utilisant LMDz-SP ou LMDz-NP, où la convection profonde est paramétrisée par le schéma de Emanuel (1991). De même, l'estimation des flux de gaz dont les échanges entre la troposphère et la stratosphère influencent fortement ces concentrations troposphériques (le N_2O par exemple) pourrait être grandement améliorée avec une version du modèle à 39 niveaux sur la verticale. Les inversions contraintes par des colonnes atmosphériques, où la contribution des concentrations de la haute troposphère/basse stratosphère n'est pas négligeable, pourraient également être aussi améliorées grâce à l'apport de l'augmentation de la résolution verticale. L'augmentation du réalisme et de la variabilité des concentrations atmosphériques simulée par LMDz-NP grâce à la combinaison du schéma de Yamada (1983) et du modèle des thermiques pourrait permettre d'assimiler des concentrations mesurées à certaines stations localisées proches de sources de méthane, qui étaient jusqu'à présent retirer du processus d'inversion. Cependant, une attention particulière doit être requise pour la détermination des erreurs intégrées à la matrice \mathbf{R} (voir section 3.4.4). En effet, une mauvaise spécification des erreurs (et notamment une sous-estimation des erreurs) associée à une grande variabilité des concentrations atmosphériques simulées pourrait dégrader la convergence et l'optimisation des sources et puits de méthane par modélisation inverse.

5.4 Publication : « Atmospheric transport and chemistry of trace gases in LMDz5B : evaluation and implications for inverse modelling »

Geosci. Model Dev. Discuss., 7, 4993–5048, 2014
www.geosci-model-dev-discuss.net/7/4993/2014/
doi:10.5194/gmdd-7-4993-2014
© Author(s) 2014. CC Attribution 3.0 License.



This discussion paper is/has been under review for the journal Geoscientific Model Development (GMD). Please refer to the corresponding final paper in GMD if available.

Atmospheric transport and chemistry of trace gases in LMDz5B: evaluation and implications for inverse modelling

R. Locatelli¹, P. Bousquet¹, F. Hourdin², M. Saunois¹, A. Cozic¹, F. Couvreux³, J.-Y. Grandpeix², M.-P. Lefebvre^{2,3}, C. Rio², P. Bergamaschi⁴, S. D. Chambers⁵, U. Karstens⁶, V. Kazan¹, S. van der Laan⁷, H. A. J. Meijer⁷, J. Moncrieff⁸, M. Ramonet¹, H. A. Scheeren^{4,7}, C. Schlosser⁹, M. Schmidt^{1,*}, A. Vermeulen¹⁰, and A. G. Williams⁵

¹Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE), Gif-sur-Yvette, France

²Laboratoire de Meteorologie dynamique (LMD) – Jussieu, Paris, France

³Centre National de Recherches Meteorologiques (CNRM-Game), Météo-France, Toulouse, France

⁴Institute for Environmental and Sustainability, Joint Research Centre, European Commission, Ispra, Italy

⁵Australian Nuclear Science and Technology Organisation, Locked Bag 2001, Kirrawee DC, NSW 2232, Australia

⁶Max Planck Institute for Biogeochemistry, Jena, Germany

⁷Centre for Isotope Research, ESRIg, University of Groningen, Nijenborgh 4, 9747 AG Groningen, the Netherlands

⁸School of GeoSciences and Centre for Terrestrial Carbon Dynamics, University of Edinburgh, Edinburgh, UK

⁹Federal Office for Radiation Protection (BfS), Willy-Brandt-Str. 5, 38226 Salzgitter, Germany

¹⁰Energy research Centre of the Netherlands (ECN), Petten, the Netherlands

* now at: Centre for Ocean and Atmospheric Sciences, School of Environmental Sciences, University of East Anglia, Norwich, UK

** now at: Institut für Umweltphysik, Heidelberg University, INF 229, 69120 Heidelberg, Germany

Received: 4 June 2014 – Accepted: 15 July 2014 – Published: 31 July 2014

Correspondence to: R. Locatelli (robin.locatelli@lsce.ipsl.fr)

Published by Copernicus Publications on behalf of the European Geosciences Union.

Abstract

Representation of atmospheric transport is a major source of error in the estimation of greenhouse gas sources and sinks by inverse modelling. Here we assess the impact on trace gas mole fractions of the new physical parameterisations recently implemented in the Atmospheric Global Climate Model LMDz to improve vertical diffusion, mesoscale mixing by thermal plumes in the planetary boundary layer (PBL), and deep convection in the troposphere. At the same time, the horizontal and vertical resolution of the model used in the inverse system has been increased. The aim of this paper is to evaluate the impact of these developments on the representation of trace gas transport and chemistry, and to anticipate the implications for inversions of greenhouse gas emissions using such an updated model.

Comparison of a one-dimensional version of LMDz with large eddy simulations shows that the thermal scheme simulates shallow convective tracer transport in the PBL over land very efficiently, and much better than previous versions of the model. This result is confirmed in three dimensional simulations, by a much improved reproduction of the Radon-222 diurnal cycle. However, the enhanced dynamics of tracer concentrations induces a stronger sensitivity of the new LMDz configuration to external meteorological forcings. At larger scales, the inter-hemispheric exchange is slightly slower when using the new version of the model, bringing them closer to observations. The increase in the vertical resolution (from 19 to 39 layers) significantly improves the representation of stratosphere/troposphere exchange. Furthermore, changes in atmospheric thermodynamic variables, such as temperature, due to changes in the PBL mixing, significantly modify chemical reaction rates and the equilibrium value of reactive trace gases.

One implication of LMDz model developments for future inversions of greenhouse gas emissions is the ability of the updated system to assimilate a larger amount of high-frequency data sampled at high-variability stations. Others implications are discussed at the end of the paper.

5.4.1 Introduction

A better knowledge of biogeochemical cycles is fundamental to improving our understanding of processes and feedbacks involved in climate change. Carbon dioxide (CO₂) and methane (CH₄), the two main anthropogenic greenhouse gases, currently play a key role in biogeochemical cycles. Improving the global estimates of their sources and sinks are therefore highly sought after. To date, considerable uncertainty remains regarding the annual global terrestrial CO₂ sink (Ciais et al., 2013), and a consensus has yet to be reached on the cause of recent increases of atmospheric methane (Rigby et al., 2008; Bousquet et al., 2011; Kai et al., 2011; Aydin et al., 2011; Levin et al., 2012). Indeed, large uncertainties still exist in the estimates of major methane sources and sinks (Kirschke et al., 2013; Ciais et al., 2013).

One of the methods to derive greenhouse gas sources and sinks is to adapt the inverse problem theory to the atmospheric sciences : from observations (in-situ measurements, satellite retrievals, etc.) and a prior knowledge of emissions, it is possible to derive emissions of a given greenhouse gas using a Bayesian formalism together with an atmospheric chemistry-transport model (CTM), or with a global climate model (GCM) (Rodgers, 2000; Tarantola, 2005). This method has been widely used since the mid-nineties to estimate sources and sinks of CO₂ (Rayner et al., 1999; Bousquet et al., 1999; Peylin et al., 2005; Chevallier et al., 2005) and CH₄ (Hein et al., 1997;

Houweling et al., 1999; Bousquet et al., 2006; Chen and Prinn, 2006; Bergamaschi et al., 2010).

The consistency of inverse estimates of regional emissions by inverse modelling is mostly dependent on : (a) the number, accuracy and spatio-temporal coverage of observations constraining the inversion, (b) the ability of the CTM to simulate atmospheric processes (Gurney et al., 2002; Locatelli et al., 2013), and (c) the quality of prior estimates. Regarding observations, the situation is slowly improving but remains at the same time problematic : more atmospheric data has become available in recent years (continuous surface measurements, aircraft profiles, remote sensing from the surface or from space) but their temporal sustainability is not yet guaranteed (Houweling et al., 2012). On the modelling side, developments have been made to improve resolution and transport, but the assimilation of continental sites close to emission areas remains challenging for global CTMs with too coarse resolutions. For example, Geels et al. (2007) showed large differences in the ability of CTMs to reproduce synoptic variations of CO₂ at continental sites. More recently, Locatelli et al. (2013) showed that deficiencies in CTM simulations of atmospheric methane are responsible for errors in inverse estimates increasing from 5 % at the global scale to 150 % at model resolution (~ 300km x 300km). These two studies and others (Chevallier et al., 2010; Houweling et al., 2010; Kirschke et al., 2013) have pointed out that the skills of CTMs require urgent improvements to reduce uncertainties in trace gas source/sink estimates and take full advantage of the available and increasing data.

In the PYVAR (PYthon VARIational) variational inverse framework (Chevallier et al., 2005), the transport component (an offline version of the LMDz atmospheric model Hourdin et al., 2006) is coupled to a simplified linear chemical scheme, SACS (Simplified Atmospheric Chemistry System ; Pison et al., 2009) and simulates atmospheric gas concentrations from prior emission estimates. Recently, some limitations of the PYVAR-LMDz-SACS combination regarding large-scale transport have been highlighted, which may lead to biases in estimates of trace gas emissions. For example, Locatelli et al. (2013) showed that the fast inter-hemispheric (IH) exchange rate of LMDz-SACS introduces a negative (positive) bias in estimated CH₄ emissions in the southern (northern) hemisphere compared to CTMs with slower IH exchange rates. Moreover, as with some other coarse-resolution CTMs, LMDz-SACS appears to underestimate synoptic variability of trace gases at the surface compared to observations (Geels et al., 2007; Locatelli et al., 2013). Consequently, biases can occur in emission estimates, especially at the regional scale. The versions of LMDz-SACS used so far are also in the low resolution range of CTMs used worldwide to model greenhouse gases (Patra et al., 2011), in both the vertical (19 layers representing the surface from surface to 2 hPa) and horizontal (3.75° × 2.5°). Overall, several aspects of LMDz need to be updated to address these trace gas modelling issues.

Paths to improve the representation of trace gas concentrations may differ for “on-line” (GCM) and “offline” (CTM) models. “Offline” models use external meteorological fields (from weather forecast centres) for inputs inducing a dependence on meteorological model performances. Consequently, intensive and consistent pre-processing of the meteorological fields is necessary to ensure the quality and comparability of results. Indeed, Bregman et al. (2001) showed that performance of CTMs might largely differ depending on how meteorological fields are used. For example, Segers et al. (2002) designed an interpolation and re-gridding method for mass fluxes in the spectral domain (as is generally employed in meteorological models). Furthermore, to limit inconsistencies, the meteorological model and CTM should employ similar physical parameterisations. Thus, physical parameterisations are generally imposed by weather forecast centre strategies ; although some adaptations may be made. For example, Monteil et al. (2013) proposed an extension of their advection scheme by accounting for horizontal

mixing in the presence of deep convection in order to improve the modelling of IH exchange, which have been highlighted to be underestimated in [Patra et al. \(2011\)](#), by the TM5 model.

“Online” models compute their own transport and meteorology, using physical conservation laws, and parameterise subgrid-scale transport processes at the same time. Physical, dynamical and chemical processes interact directly and consistently as they do in the real world. Consequently, efforts to improve the atmospheric transport of “online” models are generally focused on the physical and/or dynamical schemes. The efficacy of these developments can then be evaluated using trace gas observations ([Belikov et al., 2013](#); [Geels et al., 2007](#)). A caveat of online models representing trace gas concentrations is that they need to be nudged towards real meteorology in some way if one wants to represent the actual transport for a given year.

A new version of the LMDz physics was recently developed and implemented ([Hourdin et al., 2012b](#); [Rio and Hourdin, 2008](#)) to simulate processes in the troposphere more realistically, especially in the PBL (turbulent transport, mixing by coherent structures of the convective boundary layer, convection). The vertical resolution of the model version for the inverse system has also been doubled (from 19 to 39 layers) and the horizontal resolution improved (from 72 to 96 points in latitude). The impact of these modifications has already been evaluated in a dynamical and physical sense ([Hourdin et al., 2006, 2012b](#)) but not yet for the transport of trace gases.

The aim of this paper is to evaluate the ability of the modified LMDz model to transport trace gases, with the ultimate goal to use this new version to estimate trace gas sources and sinks with inverse modelling. In Sect. 5.4.2, we describe the various LMDz configurations compared and evaluated in this study. In Sect. 5.4.3.1, we compare a single column model version of LMDz to a large eddy simulation (LES) to evaluate the new PBL transport parameterisations. In Sect. 5.4.3.2, we use Radon-222 observations to evaluate the ability of the new parameterisations to reproduce diurnal cycles of trace gas concentrations. In Sect. 5.4.4, we evaluate the large scale model behaviour. Finally, in Sect. 5.4.5, we discuss the implications of this new version of the LMDz model for future inversion studies of greenhouse gas emissions.

5.4.2 Modelling of atmospheric transport in LMDz

The LMDz atmospheric general circulation model (GCM) is the atmospheric component of the Institut Pierre-Simon Laplace Coupled Model (IPSL-CM) used for climate change projections in the 3rd ([Marti et al., 2010](#)) and 5th ([Dufresne et al., 2013](#)) phase of the Coupled Model Intercomparison Project (CMIP3 and CMIP5, respectively), which contributed significantly to the two most recent Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC) assessment reports.

The LMDz version used in the inverse system of [Chevallier et al. \(2005\)](#) parameterises deep convection according to [Tiedtke \(1989\)](#). The local closure of [Laval et al. \(1981\)](#) is employed in the surface layer and a vertical diffusion scheme ([Louis, 1979](#)) operates in the boundary layer, in which turbulent diffusion coefficients depend on a Richardson number computed from local atmospheric gradients. Recent parameterisations have been integrated into LMDz in order to more properly represent some important sub-grid scale processes. Indeed, sub-grid scale schemes using a local approach (as in [Louis, 1979](#)) are not able to simulate the different scales acting in the boundary layer ([Zhang et al., 2005](#)). In particular, coherent structures of the convective boundary layer such as thermals are not represented well by such local approaches ([Bougeault and Lacarrère, 1989](#); [Rio and Hourdin, 2008](#)).

With these issues in mind, [Hourdin et al. \(2002\)](#) developed a mass-flux approach to describe the dry convective structures of the boundary layer : the thermal plume model.

This model has been combined with the Yamada (1983) diffusion scheme to represent local and non-local transport within the convective boundary layer in a unified way. The thermal plume model has been extended to represent both dry and cloudy thermals by Rio and Hourdin (2008). The result is a significant improvement of the representation of the diurnal cycle of thermodynamical and dynamical variables of the boundary layer and of shallow cumulus clouds.

Concerning the parameterisation of deep convection, the Tiedtke (1989) scheme has been replaced by that of Emanuel (1991). Both are so-called mass-flux schemes. The atmospheric column is divided into three parts : a convective-scale updraft, a convective-scale downdraft, and compensating subsidence in the environment. Both convective-scale updraft and downdraft are handled differently in the two schemes. The Tiedtke scheme uses for the updraft an entraining plume approach with prescribed entrainment and detrainment rates at each level. The downdraft is driven by evaporation in a way to maintain it saturated until cloud base. The Emanuel scheme uses for the updraft the so-called “episodic mixing and buoyancy sorting” approach, in which parcels of the adiabatic updraft originating from low-levels layers are mixed with environmental air at each level, forming mixtures of different buoyancies. Each mixture then moves adiabatically up or down to its level of neutral buoyancy where it detrains into the environment. A fixed part of precipitation falls outside the clouds at each level, where it evaporates, driving an unsaturated downdraft driven by buoyancy. Hourdin et al. (2006) demonstrated that the Emanuel (1991) scheme improved the representation of the Hadley-Walker circulation in LMDz. Heinrich and Jamelot (2011), who studied the transport of the natural radionuclides ^{210}Pb and ^7Be using Tiedtke (1989) and Emanuel (1991) schemes for convection and different scavenging parameterisations, confirmed that Emanuel (1991) captures the mean climate better, even though none of the configurations lead to satisfactory agreements on a daily scale in the Tropics. Rio et al. (2009) showed that the thermal plume model, by representing the shallow convection phase, delays the initiation of deep convection. The coupling of the Emanuel (1991) scheme with the parameterisation of cold pools developed by Grandpeix and Lafore (2010) via a new triggering and closure formulation also leads to the self-sustainment of deep convection through the afternoon and early evening, in better agreement with observations.

Concerning model resolution in the inverse system, the current version of LMDz has a grid of 96 cells in longitude by 72 cells in latitude (about $3.75^\circ \times 2.5^\circ$), with 19 layers in the vertical. This configuration was adopted in 2003 to balance computing time issues regarding variational inversions and spatio-temporal resolution of flux estimates by inverse methods. With recent advances in computing power, the coarse LMDz-SACS resolution, especially in the vertical, is thought to have become a significant limitation. Consequently, a new LMDz-SACS configuration was designed with 39 vertical layers, and 96 points both in longitudinal and latitudinal directions.

We henceforth use “NP” to refer to the new physical parameterisation package of LMDz : the Yamada (1983) diffusion scheme combined with the cloudy thermal plume model (Rio and Hourdin, 2008; Rio et al., 2009) and the Emanuel (1991) convection scheme revisited by Grandpeix and Lafore (2010) with a new triggering and closure formulation and the representation of cold pools driven by the evaporation of precipitation. This configuration is very similar to LMDz5B (Hourdin et al., 2012b), which has been used to produce a set of CMIP5 simulations with IPSL-CM5B. We use “TD” to refer either to the Tiedtke (1989) deep convection scheme, or the LMDz configuration using the physical parameterisations of LMDz-SACS : a combination of the Tiedtke (1989) and Louis (1979) schemes. In the literature, this version is known as LMDz3 (Li, 1999; Li and Conil, 2003). Finally, we also evaluate an intermediate version of LMDz (hereafter named “SP” standing for Standard Physic), which uses the Emanuel (1991)

scheme for convection, but not the thermals, and also differs from TD in the boundary layer mixing (a counter-gradient term on potential temperature is added according to [Deardorff, 1966](#)). This last configuration is the LMDz5A version used for CMIP5 simulations with IPSL-CM5A and is very close to the original LMDz4 version ([Hourdin et al., 2006](#)). Unless otherwise specified, all versions of LMDz are run with 96x96 points in both horizontal directions, and with 39 vertical layers. A summary of model versions is presented in Table 5.2.

LMDz configuration	Boundary Layer Mixing	Deep Convection	Reference version
TD	Vertical diffusion (Louis, 1979)	Tiedtke (1989)	LMDz3
SP	Vertical diffusion (Louis, 1979) + adjustments (Deardorff, 1966)	Emanuel (1991)	LMDz5A
NP	Vertical diffusion (Yamada, 1983) + Thermal plume model (Rio and Hourdin, 2008) (Rio et al., 2009)	Emanuel (1991) modified by Grandpeix and Lafore (2010)	LMDz5B

TABLE 5.2: Description of the sub-grid scale schemes used in the three configurations of LMDz (TD, SP and NP).

5.4.3 Evaluation of atmospheric transport in the PBL

In this section, we investigate the ability of the LMDz model to represent transport of tracers in the planetary boundary layer, first at one dimension (Sect. 5.4.3.1) and then with the 3-D model (Sect. 5.4.3.2).

5.4.3.1 LMDz Single Column Model vs. Large Eddy Simulation

In recent decades, several comparisons have been made between Single Column Models (SCM) and Large Eddy Simulations (LES) to better understand physical parameterisations ([Ayotte et al., 1996](#); [Galmarini, 1998](#)).

Here we compare three single-column versions of LMDz with LES from the non-hydrostatic model Meso-NH ([Lafore et al., 1998](#)). Originally, these LES were designed to evaluate the conditional sampling used by [Couvreur et al. \(2010\)](#) for the improvement of convective boundary layer mass-flux parameterisations. Here, we use them to characterize the atmospheric transport of surface-emitted short lived tracers, and evaluate corresponding simulations by three SCM versions of LMDz. The case chosen for evaluation represents a situation of shallow continental convection in the Southern Great Plains (SGP) of the Atmospheric Radiation Measurement (ARM) site on 21 June 1997. More details about this case can be found in [Brown et al. \(2002\)](#). The tracer is emitted every minute with a constant surface flux, and has a first-order decay time constant of 15 min. The horizontal LES resolution is 40 m and there are 40 vertical levels between the surface and 4000 metres. We consider the LES as our point of reference.

The three versions of LMDz-SCM used are differentiated by their deep convection and vertical diffusion parameterisations. Firstly, SCM-TD uses the [Tiedtke \(1989\)](#) deep convection scheme, while SCM-SP uses the [Emanuel \(1991\)](#) deep convection scheme. Both of these versions use a local formulation of the turbulence to represent small-scale mixing. In the following we also refer to [Emanuel \(1991\)](#) scheme using “KE” abbreviation. Secondly, SCM-NP contains the most recent physical parameterisations introduced in LMDz (thermal plume model of [Rio and Hourdin, 2008](#); [Rio et al., 2009](#) combined with [Yamada, 1983](#) vertical diffusion). In SCM-TD and SCM-SP, the deep convection scheme is meant to represent both shallow and deep convection so that

the Tiedtke and Emanuel schemes have to be activated to represent this case of fair-weather cumulus. However, in SCM-NP, shallow convection is handled by the thermal plume model and the Emanuel scheme is deactivated in this simulation.

During the 9 h LES (Fig. 5.1, bottom right), the usual boundary layer thickening is observed during the morning related to incoming solar radiation. Physical processes acting in the boundary layer (small-scale turbulence, convection, mixing by thermal plumes, etc.) vertically distribute the surface-emitted tracer. At 1 p.m. (p.m. stands for *post meridiem*) LT (Local Time), the tracer is diluted within a layer reaching 2000 metres.

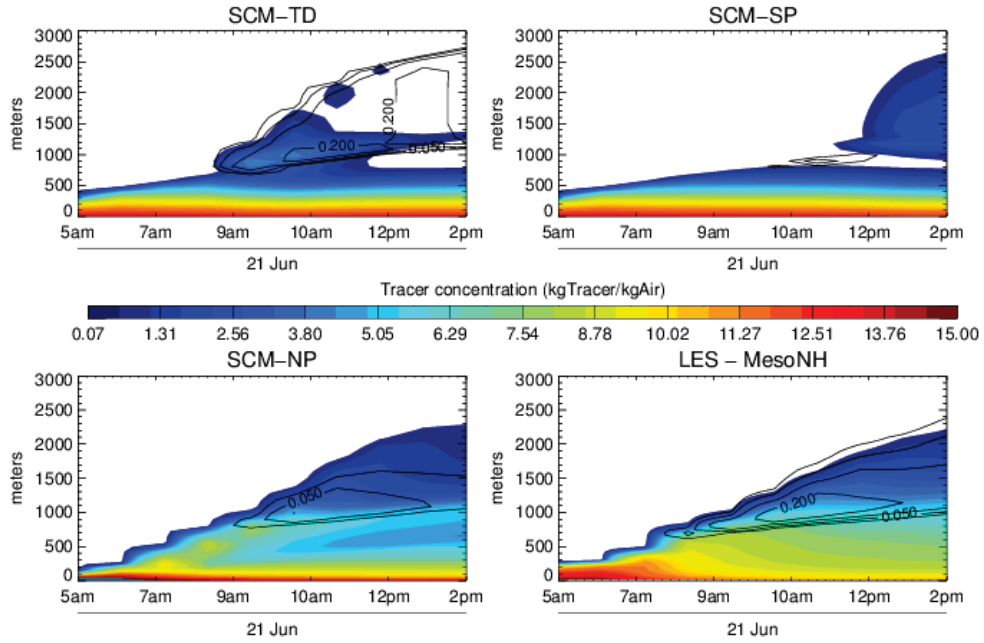


FIGURE 5.1: Atmospheric transport of an ideal tracer simulated by three different versions of a single-column configuration of LMDz model (SCM-TD (top left), SCM-SP (top right) and SCM-NP (bottom left)). These one-dimensional simulations are compared with a Large Eddy Simulation simulation (bottom right) of Meso-NH. The tracer is emitted at the surface and has a half-time life of 15 minutes in the atmosphere. This case represents an ideal shallow convection over land case at the Southern Great Plains of the Atmospheric Radiation Measurement site on June 21st 1997. Black contours represent the total cloud cover (in fraction of the grid cell). Contour values are 0.025, 0.05, 0.1 and 0.2%.

The three LMDz-SCM versions exhibit markedly different skills in their attempt to reproduce the LES reference case. In the SCM-TD and SCM-SP simulations, the tracer is confined within a 500 m layer near the surface until 9 a.m. LT (SCM-TD) or 12 p.m. LT (SCM-SP). In SCM-TD, some tracer mass is transported vertically after 9 a.m. LT, but tracer concentrations in the upper layers stay much lower than in the LES case. Indeed, tracer mixing ratios are insignificant at 2000 m after 11 a.m., while they reach 3.5 kg.kg^{-1} in the LES. In SCM-SP, upper mixing ratios are more consistent after 12 p.m. LT, but the vertical gradient from the surface to 2000 m is badly represented compared to the LES. In particular, surface mixing ratios are largely over-estimated (9 kg.kg^{-1} in the LES vs. 13 kg.kg^{-1} in SCM-SP). These statements suggest that vertical mixing during a shallow convection case are badly represented in SCM-TD and SCM-SP. By contrast, SCM-NP shows better agreement with the LES reference : the tracer is vertically mixed in a layer that is thickening during the day as in the reference. Given

that the KE scheme was deactivated in the SCM-NP simulations, in order to highlight thermal actions on vertical mixing, it appears that thermals and vertical diffusion are responsible for the good representation of atmospheric transport in this case of shallow convection. However, it is also important to note that tracer mixing ratios are slightly under-estimated in the mixed layer. It is especially true at 12 p.m. around 500 m : SCM-NP simulates tracer mixing ratios of 5 kg.kg^{-1} , while they reach 8 kg.kg^{-1} in the LES. The underestimation of tracer concentrations in the mixed layer could be due to an underestimation of detrainment from thermals at those levels or to the underestimation of vertical mixing by the diffusive scheme.

We hereafter define trends as the change of mixing ratios (or activity for ^{222}Rn , Sect. 5.4.3.2) due to a certain transport process (unit : mass mixing ratio (or Bq m^{-3} for ^{222}Rn) per a unit of time ; processes : PBL mixing, convection, thermals and advection). Here, the unit is kilogram per kilogram per second ($\text{kg.kg}^{-1}.\text{s}^{-1}$). Trends in the vertical transport of tracers in the boundary layer due to deep convection (SCM-TD and SCM-SP) and thermal plumes (SCM-NP) are shown in Fig. 5.2. Positive trends (red colours) at a specific level mean that the process brings tracer to this level. Conversely, negative trends (blue colours) mean that the process moves some tracer to another level.

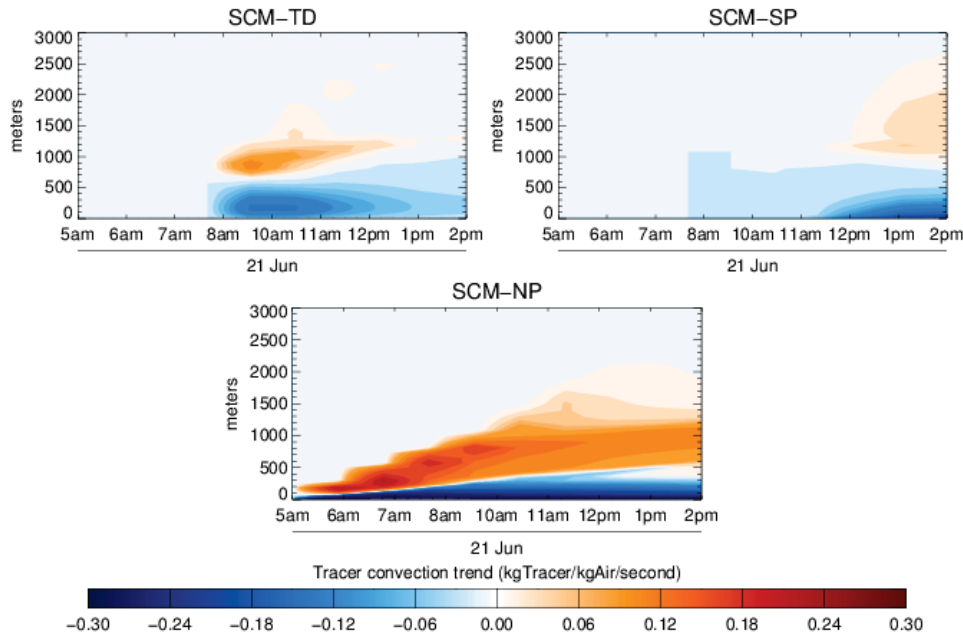


FIGURE 5.2: Deep convection trends (in $\text{kgTracer/kgAir/second}$) simulated in SCM-TD (top left) and SCM-SP (top right) configurations are compared with thermal trends simulated by SCM-NP in an ideal shallow convection over land case. Positive (Negative) trends are represented in shades of red (blue, respectively).

In SCM-TD and SCM-SP, vertical transport of the tracer within the PBL (after 9 a.m. and 12 p.m. respectively) is not due to the PBL and turbulent diffusion scheme but, in an opportunistic way, to deep convection (Fig. 5.2, top left and top right). In SCM-NP, on the other hand, the thermal plume model is very efficient for transporting tracers from the surface to the top of the boundary layer during daylight hours (Fig. 5.2, bottom). It appears that convection schemes like TD or KE are not able to properly simulate shallow convection over land in this case. Indeed, they are not really designed to simulate convection reaching only 2000 m height, whereas the modelling of atmospheric transport within cumulus-topped convective boundary layer is well reproduced by the thermal scheme (Rio and Hourdin, 2008). This case of the atmospheric transport of

a short-lived tracer confirms that the thermal plume model of [Rio and Hourdin \(2008\)](#); [Rio et al. \(2009\)](#) is really efficient at properly simulating shallow convective mixing over land.

5.4.3.2 Three dimensional simulations of ^{222}Rn

Statistical evaluation in the PBL

After a promising 1-D evaluation (Sect. 5.4.3.1), we seek here to evaluate the new physical parameterisations of LMDz for 3-D simulations on longer time and spatial scales. To do so, we used the different versions of LMDz (Table 5.2) to simulate concentrations of the natural radioactive gas radon (^{222}Rn). Radon is particularly well suited to evaluate diurnal mixing in the continental lower troposphere because it is a poorly soluble gas, and it is only emitted by continental surfaces and has a half-life of 3.8 days. These physical characteristics have lead radon to be used in many studies evaluating the performance of GCMs ([Mahowald et al., 1997](#); [Genthon and Armengaud, 1995](#); [Belikov et al., 2013](#)). Radon is produced from the radioactive decay of uranium-238 and is emitted fairly uniformly from terrestrial surfaces. Generally, radon emissions are quite well known globally ([Zhang et al., 2011](#)), and it is considered that a flux of $1 \text{ atom.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ is approximately valid for ice-free terrestrial surfaces ([Jacob et al., 1997](#)). While continuous radon measurements exist worldwide, the coverage is better in Europe. Therefore, here we use a refined radon flux map for European emissions ([Karstens et al., 2014](#)), the rest of the continental lands emitting $1 \text{ atom.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ between 60° N and 60° S and $0.5 \text{ atom.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ between 60° N and 70° N (excluding Greenland). Elsewhere, no radon flux is considered. As a consequence, our analysis is focused mainly on European stations (11 stations in Western Europe), even though results for stations outside Europe are also presented. The Table 5.3 describes the different stations where ^{222}Rn measurements are available for this study. Note that different measurement techniques are used at the stations to measure ^{222}Rn . In particular, ^{222}Rn measurements using methods based on short-lived daughters applied a station depended disequilibrium factor ([Schmithüsen et al., 2014](#)).

Figure 5.3 provides a statistical overview of the performance of the NP and TD models by comparing measured and simulated hourly radon concentrations over a 6 year period (2006–2011). Here the red boxplots represent the NP simulations, whereas the green boxplots correspond to simulations using the current version of LMDz in PYVAR (the TD simulation). The black boxplots represent the observations.

For most stations, the box width (representing the interquartile range) is relatively similar between observed and simulated values. However, large differences occur in the extreme values (black circles). The observed high concentration “outliers” correspond primarily to pre-dawn measurements on stable nights when PBL heights are lowest. A considerably better agreement is generally found between observed outliers and those simulated by NP, meaning that the NP simulation is better at representing the shallow nocturnal PBL mixing depths associated with stable atmospheric conditions. Nocturnal mixing depths in TD, on the other hand, are too deep when the atmosphere is stable, or nearly stable, resulting in considerable underestimation of the outlier radon values.

More precisely, skills of TD and NP simulations may be very different at some specific stations. For example, NP simulation gives remarkably good results at Heidelberg (HEI) station where NP is able to reproduce the strong diurnal cycle of ^{222}Rn concentrations measured at this site. On the contrary, TD time series at Heidelberg are very smooth and the diurnal cycle amplitude is strongly under-estimated. Similar results are found at Richmond (RIC) station in Australia. At Ispra (IPR) station, both TD and NP

Station ID	Name	Country	Reference
AMS ¹	Amsterdam Island	France	Gaudry et al., 1990
CB1 ²	Cabauw (20m)	Netherlands	Popa et al., 2011 ; Vermeulen et al., 2011
CB4 ²	Cabauw (200m)	Netherlands	Popa et al., 2011 ; Vermeulen et al., 2011
CGO ²	Cape Grim	Australia	Griffiths et al., 2010
CPT ²	Cape Point	South Africa	Slemr et al., 2013
EGH ¹	Egham	United Kingdom	Lowry et al., 2001
GIF ¹	Gif-sur-Yvette	France	Lopez et al., 2012 ; Yver et al., 2009
GSN ²	Gosan	South Korea	Kim et al., 2014
HEI ¹	Heidelberg	Germany	Levin et al., 2002
IPR ²	Ispra	Italy	Scheeren and Bergamaschi, 2012
LUH ²	Lucas Heights	Australia	A. Williams (pers. com.)
LUT ²	Lutjewad	Netherlands	van der Laan et al. 2010
MHD ¹	Mace Head	Ireland	Biraud et al., 2000
MLO ²	Mauna Loa	Hawaiï, USA	Chambers et al., 2013
PAL ¹	Pallas	Finland	Hatakka et al., 2013
RIC ²	Richmond	Australia	A. Williams (pers. com.)
SIL ¹	Schauinsland	Germany	Xia et al., 2010
TTA ²	Angus	United Kingdom	Smallman et al., 2014

TABLE 5.3: Description of the different surface stations used for the evaluation of 3D simulations of ^{222}Rn . ¹ : Radon-222 is derived by using methods based on short-lived daughters ; ² : Radon-222 is directly measured using gas analysers.

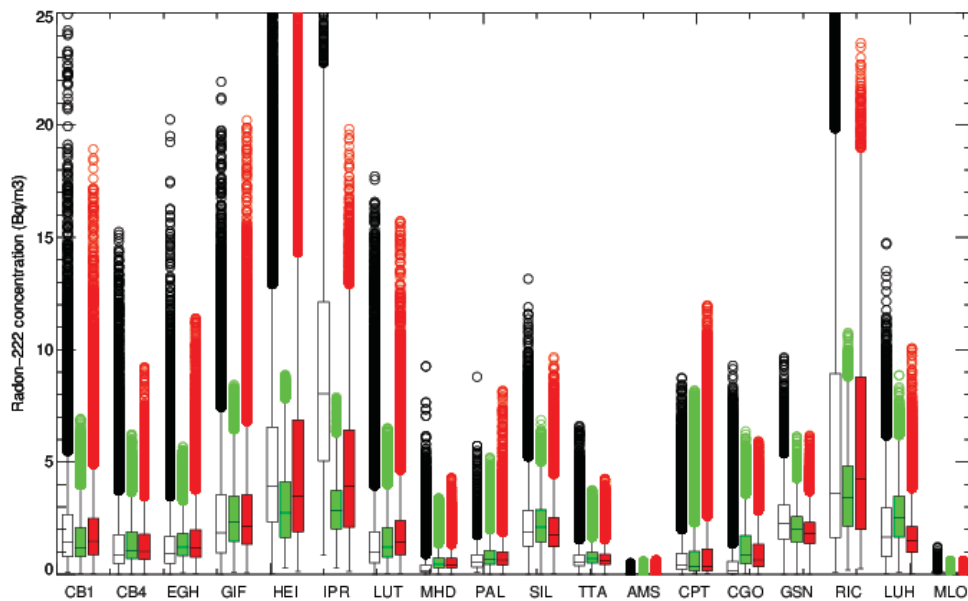


FIGURE 5.3: Comparisons of ^{222}Rn boxplot simulated by NP (red) and TD (green) versions of LMDz with boxplot based on measurements (black) sampled at 18 surface stations over a 6-year period (2006-2011). The bottom and the top of the box are the first and the third quartiles of the data distribution. The band inside the box is the median. The ends of the whiskers represent the lowest datum still within $1.5 \times \text{IQR}$ (Inter-Quartile range) of the lower quartile and the highest datum still within $1.5 \times \text{IQR}$ of the upper quartile. Stations are marked by three letters abbreviations (see Table 5.3).

models disagree with the observations, although NP boxplot is closer to observation boxplot than TD. Indeed, LMDz is not able to properly simulate radon concentrations at this station, which is bordered by the Po Valley region in the south and the Alps Mountains in the north. One possible reason of this failure is the relatively coarse horizontal resolution of LMDz, for this complex location. This is a typical example of representativity errors in global models.

Case studies in the PBL

Here, we illustrate some typical LMDz behaviours in two case studies : at Heidelberg (Germany) in April 2009 (Figs. 5.4 and 5.5) and Lutjewad (Netherlands) in February 2008 (Figs. 5.6 and 5.7).

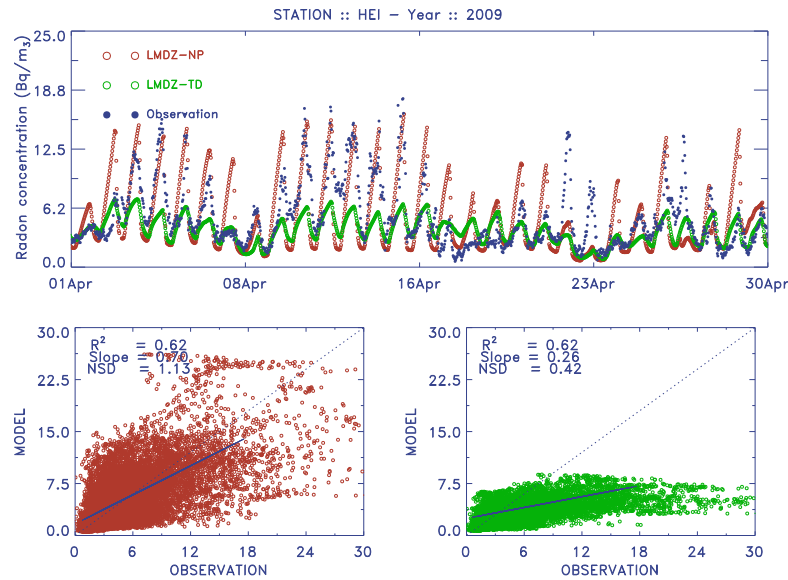


FIGURE 5.4: Time series of ^{222}Rn hourly concentrations at **Heidelberg in April 2009**. Red (Green and Blue) time series refer to NP simulation (TD simulation and observations, respectively). Scatter plots for NP and TD are also showed with main statistic diagnostics (R-square coefficient, normalized standard deviation (NSD) and slope coefficient of the linear regression)

At Heidelberg in April 2009 (Fig. 5.4), NP reproduces the radon diurnal cycle very well, especially the peak nocturnal concentrations between the 8 and the 16 April. TD, on the other hand, poorly reproduces the amplitude of the diurnal cycle ; with peak nocturnal values (7 Bq m^{-3}) reaching less than half of the observed peaks (18 Bq m^{-3}). As a consequence, for the whole month of April, normalized standard deviations (NSD) are much better for NP (1.13) than for TD (0.42).

To better understand the contrasting behaviour of the two LMDz versions here, we compare time series of process trends for the first half of April 2009 at Heidelberg (Fig. 5.5). Trends are expressed here in $\text{Bq m}^{-3} \text{ h}^{-1}$. Similar trend daily cycles are clearly evident for each process. Vertical diffusion trends are positive from 18 : 00 to 08 : 00 UTC in NP. Indeed, with low nocturnal PBL height, vertical diffusion processes distribute the surface emitted radon throughout only a shallow layer resulting in a strong accumulation of radon near the surface. Vertical diffusion trends then become negative until 14 : 00 UTC. The PBL starts to grow in the morning, with the increase in solar radiation, and radon accumulated near the surface over the previous night is mixed with

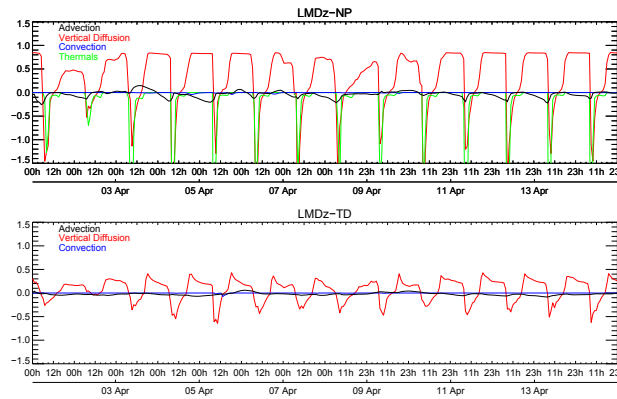


FIGURE 5.5: Time series of advection (black), vertical diffusion (red), convection (blue) and thermal (green) trends at Heidelberg station in the beginning of April 2009 for NP simulation (top) and TD simulation (bottom). The unit is $\text{Bq.m}^{-3}.\text{hour}^{-1}$.

low radon air from higher levels, resulting in lower sampled radon concentrations and a negative vertical diffusion trend. When radon is well-mixed throughout the PBL by vertical diffusion processes, the vertical diffusion trend becomes positive again, since radon is emitted at the surface. The thermals scheme transports high levels of radon from the lower to upper levels from 08 : 00 to 18 : 00 UTC and it results in a negative contribution to the total trend. Deep convection processes do not transport any radon (convection trend is null), and the impact of advection on radon concentration at Heidelberg station is generally insignificant.

For TD, the vertical diffusion trend is relatively similar to NP, although the magnitude of its diurnal cycle is 60% smaller. Indeed, maximum (minimum) of vertical diffusion trend does not exceed $0.4 \text{ Bqm}^{-3} \text{ h}^{-1}$ ($-0.5 \text{ Bqm}^{-3} \text{ h}^{-1}$, respectively), while it reaches $0.8 \text{ Bqm}^{-3} \text{ h}^{-1}$ ($-1.5 \text{ Bqm}^{-3} \text{ h}^{-1}$) in the NP simulation. In TD, the vertical diffusion is generally acting in a thicker layer, so the accumulation of radon close to surface is less pronounced, leading to smaller vertical diffusion trends. As was the case for NP, convection and advection processes are insignificant for TD, which contains no thermals. Despite the differences noted above, R-squared statistics are equal in NP and TD (0.62 for the two simulations) for Heidelberg in April 2009 (Fig. 5.4 bottom). One factor contributing to R-square values for NP lower than expected was that NP occasionally simulated peaks that were not observed as evident in Fig. 5.4 toward the end of April 2009, which fastly degrades the R-square statistic in the NP case.

We now investigate this issue with the example of radon time series at Lutjewad in February 2008 (Fig. 5.6). Indeed, a peak reaching 9 Bq m^{-3} (4 Bq m^{-3}) is simulated by NP (TD respectively) between the 8th and the 15th of February, while smaller peaks are observed (around 3 Bq m^{-3}). However, the analysis of physical process trends at Lutjewad for the same period (Fig. 5.7) is relatively similar to Heidelberg’s analysis. To understand this apparent inconsistency, an analysis of near-surface quantities has been performed. When two-metre temperatures (T_{2M}) simulated by TD and NP are compared with those obtained from the ERA-Interim product (not shown here), it is found that they are quite different (up to 7°C) during the month of February 2008. Consequently, the PBL heights are probably very different between the models and the reanalysed data, and one can not expect any good scores for modelling of radon transport to Lutjewad during this period. Note that the same T_{2M} cold bias is simulated by TD but with a much weaker impact on ^{222}Rn mole fraction. Indeed, NP simulates a peak twice bigger than the peak simulated by TD. This suggests that the sensitivity of

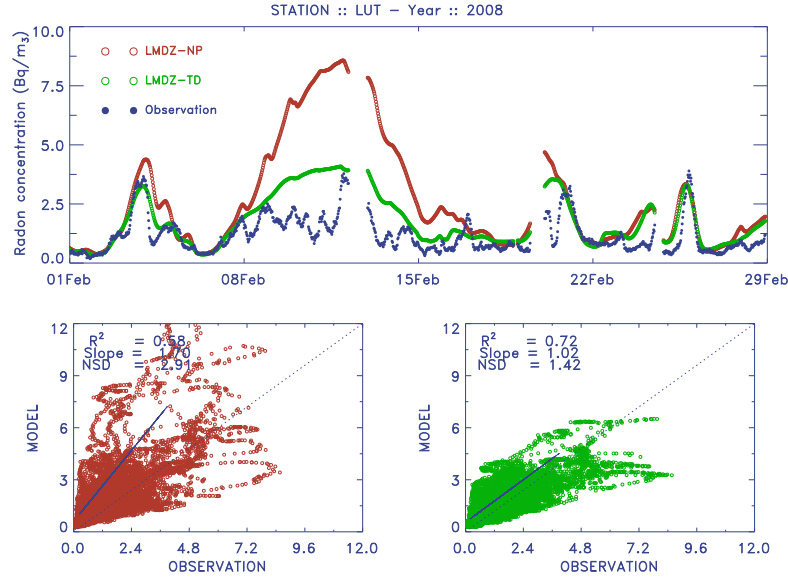


FIGURE 5.6: Time series of ^{222}Rn hourly concentrations at Lutjewad in February 2008. Red (Green and Blue) time series refer to NP simulation (TD simulation and observations, respectively). Scatter plots for NP and TD are also showed with main statistic diagnostics (R -square coefficient, normalized standard deviation (NSD) and slope coefficient of the linear regression)

the NP version is larger than in TD simulations (considering similar forcings).

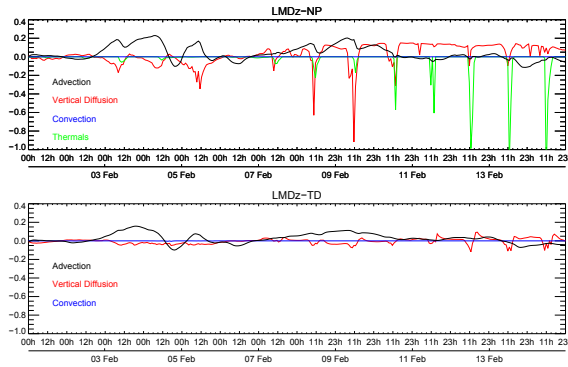


FIGURE 5.7: Time series of advection (black), vertical diffusion (red), convection (blue) and thermals (green) trends at Lutjewad station in the beginning of February 2008 for NP simulation (top) and TD simulation (bottom). The unit is $\text{Bq.m}^{-3}.\text{hour}^{-1}$.

We have also looked at surface characteristics for the Heidelberg case. Both simulations are able to reproduce diurnal cycle of T_{2M} given by ERA-Interim product in April 2009. However, only ^{222}Rn simulated by NP is able to fit the strong ^{222}Rn diurnal cycle measured at Heidelberg in April 2009. This confirms again that responses in TD simulations are much smoother than in NP simulations.

5.4.4 Modelling of large-scale atmospheric transport

In this section, we investigate the ability of different LMDz versions to represent large-scale (e.g. inter-hemispheric or troposphere/stratosphere) trace gas exchanges. To do so, we focus on longer-lived species, such as the inert sulfur hexafluoride (SF_6) (Sects. 5.4.4.1, 5.4.4.2 and 5.4.4.3) or carbon dioxide (CO_2) (Sect. 5.4.4.2), and reactive methane (CH_4) (Sect. 5.4.4.4).

5.4.4.1 Large-scale transport features of LMDz configuration using SF_6 simulations

SF_6 is a trace gas used in equipment for electrical transmission and distribution systems and in the reactive metals industry (Maiss and Brenninkmeijer, 1998). It has been widely used to study atmospheric transport (Denning et al., 1999; Law et al., 2008; Patra et al., 2009). Since it is inert, SF_6 is very long-lived in the troposphere and stratosphere (between 800 to 3200 years (Ravishankara et al., 1993; Morris et al., 1995)), which makes SF_6 a powerful tool for assessing large-scale modelling of transport processes in the atmosphere (Maiss et al., 1996).

Here we employ monthly zonal averages of SF_6 to investigate boundary layer mixing (mixing due to vertical diffusion in TD and SP, and mixing due to both vertical diffusion and thermal plumes in NP), convection and advection (unit is mass mixing ratio per month (pptm month^{-1})) as modelled in LMDz for three different configurations of the model (NP, TD and SP, see Sect. 5.4.2). We choose to present results for a summer month (July, see Fig. 5.8) as convection intensity over locations where SF_6 is mainly emitted (between 30°N and 60°N) is maximum during summer.

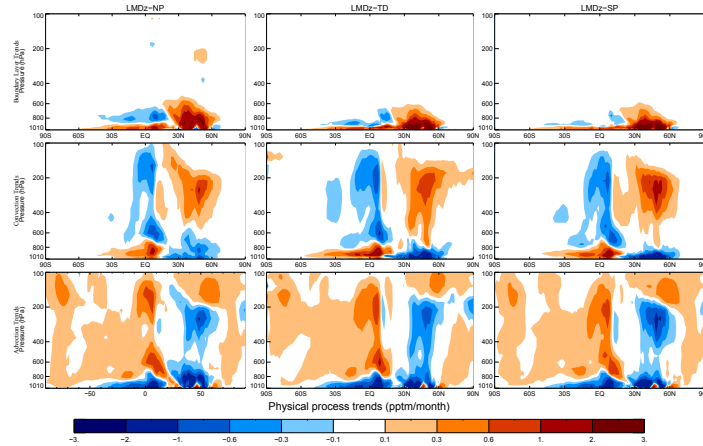


FIGURE 5.8: Zonal and monthly average of SF_6 boundary layer (top row), convection (center row) and advection (bottom row) trends (in pptm month^{-1}) in July for NP (left-column), TD (center-column) and SP (right-column) simulations.

First of all, we detail the general transport pathway for the three configurations of LMDz. Vertical diffusion (including thermal plumes in NP) mixes SF_6 from the surface throughout the boundary layer (Fig. 5.8, top). This is very clear between 30°N and 60°N where SF_6 emissions are stronger. Above the boundary layer, vertical diffusion gradually reduces and vertical transport is mainly accomplished by deep convection (Fig. 5.8, middle), which moves SF_6 from the boundary layer to the top of the troposphere ($\sim 200\text{hPa}$). The large positive convection trend area between 30 and 60°N is consistent with the location of both strong convection area over continents and strong

SF₆ emissions at this period of the year. Then, tropospheric SF₆ is advected from 30–60 ° N to 15 ° S–15 ° N band by meridional advection (Fig. 5.8, bottom). Finally, SF₆ is transported from the high to the low levels of the troposphere by subsident motions forming the descending branch of the Hadley cell between 15 ° S and 5 ° N (blue plume on Fig. 5.8, middle).

General characteristics of large-scale transport look similar between model versions but one can wonder how much the three configurations of the model (NP, TD and SP) differ. Looking at the transport in the boundary layer, the main difference is the height at which mixing due to vertical diffusion (and thermals for NP configuration) transports SF₆. In TD or SP, vertical diffusion processes transport SF₆ up to 600 hPa, while in NP SF₆ is transported slightly higher, up to 500 hPa. If one splits the processes acting in the boundary layer for the NP configuration, one finds that vertical diffusion is mainly active from surface to 900 hPa and thermals are responsible for SF₆ transport in higher parts of the boundary layer as has been shown in Sect. 5.4.3.1. Moreover, when using the Tiedtke (1989) scheme (TD), convection transports SF₆ across more layers than in the versions using Emanuel (1991) scheme (SP and NP). Indeed, detrainment of tracers by deep convection between 800 and 500 hPa is almost non-existent in NP and SP, while it is certainly not negligible in TD. One can also notice, by comparing positive convection trends over 40 ° N in NP and SP that the intensity of convection is weaker when the thermal plume model is activated, which can be expected.

5.4.4.2 IH exchange with SF₆ and biospheric-CO₂ simulations

SF₆ simulations

The IH exchange of trace gases simulated by CTMs is very valuable indicators of how atmospheric transport performs at the global scale. For example, Patra et al. (2011) compare the IH exchange time simulated by different CTMs with an indirectly-measured exchange time using SF₆ measurements. Their method use SF₆ measurements at two stations of the Northern Hemisphere (Barrow (Alaska, USA) and Mauna Loa (Hawai, USA) stations) and two stations of the Southern Hemisphere (Cape Grim (Australia) and South Pole stations) to derive the IH gradient. We tried to apply this method in our study. However we found that uncertainties related to the choice of stations and to the station sampling levels appeared to be larger than differences in IH exchange time simulated by the different configurations of LMDz. Consequently, we do not further discuss the IH exchange time, but we analyze the IH exchange by studying SF₆ meridional gradients.

Annual means of SF₆ surface mole fractions, zonally averaged and at 11 measurement sites, are plotted in Fig. 5.9 (top) for five different configurations of LMDz. This view of the north-to-south SF₆ surface gradient gives a direct indication of IH exchange. The NP, SP and TD configurations (96x96x39) of LMDz are shown in red, blue and green respectively. We have also investigated the impact of a higher horizontal (TD-144x142x39, purple line) and a lower vertical (TD-96x72x19, orange line) resolution on IH exchange. The black diamonds show the measured SF₆ mole fraction at different surface stations. The coloured crosses show the station value for the different model configurations. For better clarity, the results of the different simulations have been adjusted to equal the mean of SF₆ mole fraction measured at the 11 surface stations.

Knowing that the majority of SF₆ emissions are located in the Northern Hemisphere, it is not surprising to see SF₆ mole fraction shifting from 5.49 ppt at the South Pole to 5.81 ppt at Alert (Canada). The maximum of zonal mean SF₆ mole fraction is reached at around 40 ° N, close to the latitudes of maximum emissions. Figure 5.9 (top) shows that simulated SF₆ mole fractions in all LMDz configurations over-estimate (under-estimate)

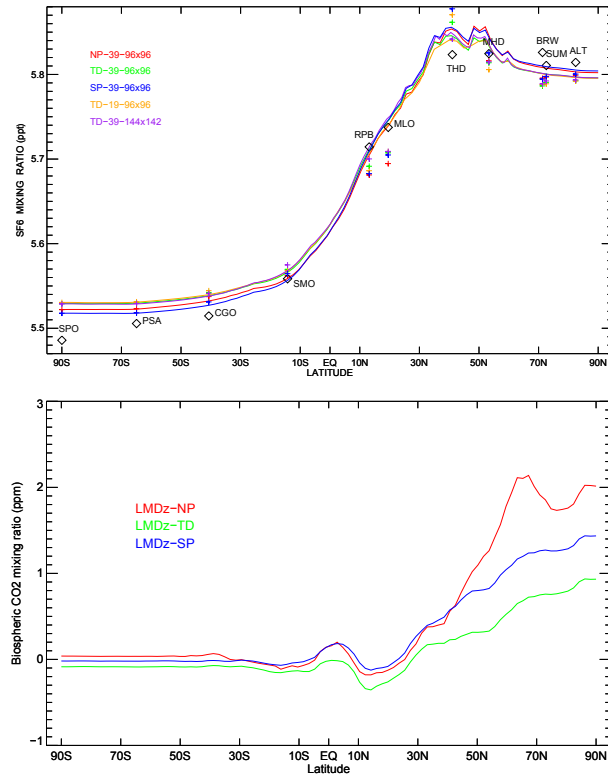


FIGURE 5.9: (a) Zonally-averaged SF₆ surface dry mole fraction (in ppt) for NP (red), TD (green) and SP (blue) configurations of LMDz using an horizontal resolution of 96 points in longitude by 96 points in latitude and with 39 vertical levels (96x96x39). Others resolutions (144x142x39 in purple, and 96x72x19 in orange) have also been tested using TD configuration. Also shown are SF₆ measurements (black crosses) at 11 surface stations coming from the NOAA/ESRL network (<http://www.esrl.noaa.gov/gmd>). (b) The rectifier effect. Surface zonal annual mean CO₂ dry mole fractions (in ppm) resulting in biosphere emissions only. The concentrations have been reduced by the global January mean concentration.

SF₆ measurements in the high latitudes of the Southern Hemisphere (in the very high latitudes of the Northern Hemisphere) confirming that IH exchange is too fast in LMDz (Patra et al., 2011). However, the two configurations of LMDz, SP and NP, both using the deep convection scheme of Emanuel (1991), have a slightly steeper IH gradient ($\sim 8\%$), although still smaller than the observed IH gradient. The steeper vertical gradient in the lower part of the troposphere when using the Emanuel scheme could be an explanation. Indeed, the detrainment in the Emanuel (1991) scheme was smaller between 800 and 600 hPa (Sect. 5.4.4.1) compared to the Tiedtke (1989) scheme. This leads to slightly higher vertical gradient in the lower part of the troposphere as shown in Table 5.4, which summarizes the vertical gradient of SF₆ between 900 and 500 hPa for the different physical sets of parameterisations used in LMDz. This is consistent with Saito et al. (2013) who show that latitudinal gradients in a CTM are generally proportional to the vertical gradients in the lower troposphere. Furthermore, vertical transport by thermals reduces vertical gradient in NP compared to SP in the first layers of the troposphere, which may explain the slightly smaller IH gradient computed in NP compared to SP. Furthermore, we find similar IH gradients when using different vertical and/or horizontal resolution with the TD version of LMDz. On the contrary, Patra et al. (2011) found slight differences between IH exchange time of high and low horizontal

resolution versions of two CTMs. However, the gap between the high and the low horizontal resolutions (from $6^\circ \times 4^\circ$ to $1^\circ \times 1^\circ$ and from $5^\circ \times 4^\circ$ to $1.25^\circ \times 1^\circ$) of the CTMs used in their study is much larger than the gap used here (from $1.875^\circ \times 3.75^\circ$ to $1.25^\circ \times 2.5^\circ$).

	TD	SP	NP
January	0.021	0.022	0.022
April	0.021	0.026	0.023
July	0.011	0.013	0.013
October	0.020	0.024	0.022

TABLE 5.4: SF₆ vertical gradient in ppt/km between 900 hPa (~ 1 km) and 500 hPa (~ 4 km) for the three configurations of LMDz (TD, SP and NP).

Overall, SF₆ latitudinal gradient differences among the different configurations of LMDz reach 0.03 ppt, the maximum (minimum) latitudinal gradient being 0.29 ppt for SP (0.26 ppt for TD-19) in our study, while in [Denning et al. \(1999\)](#) the SF₆ latitudinal gradients simulated by different CTMs exhibit differences up to 0.2 ppt. This suggests that modifications in sub-grid scale parameterisations of LMDz causes only small differences in IH transport characteristics for SF₆.

Biospheric-CO₂ simulations

Meridional transport may not be the only cause for IH gradient of trace gases. Indeed, the so-called rectifier effect, introduced by [Denning et al. \(1995\)](#), is one cause for the existence of meridional gradient of biospheric CO₂ mole fraction. The seasonal rectifier effect is the consequence of the correlation between the atmospheric transport in the PBL and the surface biospheric CO₂ flux. Indeed, both atmospheric turbulence and the flux of CO₂ from the biosphere to the atmosphere undergoes a seasonal cycle. During winter, at mid to high latitudes, microbial respiration dominates photosynthesis leading to net CO₂ emissions to the atmosphere. Moreover, stable atmospheric conditions are predominant in winter. It results higher CO₂ mole fractions at the surface than if no correlation occurs. On the contrary, during summer, photosynthesis is dominating upon respiration and unstable atmospheric conditions prevail, leading to the dilution of the net flux from atmosphere to land by strong turbulence. In summer, PBL depth can reach 2 km above mid-latitude continents at midday ([Seidel et al., 2012](#)). It results lower mole fractions at the surface than if no correlation occurs. Consequently, on an annual basis, even if global biospheric CO₂ emissions are set to zero, a meridional gradient can be generated with higher mole fractions in the Northern Hemisphere than in the Southern Hemisphere, especially above northern continental regions, such as Siberia ([Denning et al., 1995](#)).

The figure 5.9 (bottom) exposes the impact of this rectifier effect on the meridional CO₂ gradient by showing surface zonal annual mean CO₂ mole fraction due to biosphere emissions only, with zero annual emissions, as simulated by three configurations of LMDz (NP, SP and TD in red, blue and green). Each plot has been reduced by the global January mean CO₂ mole fraction. NP, SP and TD versions of LMDz respectively simulate a CO₂ meridional gradient reaching 1.8, 1.6 and 1.0 ppm between South and North Pole. These gradients are in agreement with what was previously found on the rectifier effect in the TransCom experiment ([Law et al., 1996](#); [Gurney et al., 2003](#)). Indeed, the range of meridional biospheric CO₂ gradient among chemistry-transport models spread from 0 to 3.5 ppm both in [Law et al. \(1996\)](#) and [Gurney et al. \(2003\)](#). In [Law et al. \(1996\)](#), model results can be clustered in two groups : one group of

models simulating seasonal rectifier around 0.5 ppm and one other group with rectifier around 2 ppm. In [Gurney et al. \(2003\)](#), simulated rectifier effects are much more spread between 0 and 3 ppm. From these two studies, one can conclude that NP simulating a rectifier effect of 1.8 ppm is in the higher part of the range since only 4 CTMs (over a total of 17 different CTMs) simulate a stronger rectifier effect. On the contrary, TD simulating a rectifier effect of 1.0 ppm is in the lower part since only 6 CTMs simulate a weaker rectifier effect.

Furthermore, it is noticeable to see that the different configurations of LMDz simulate oscillations in CO₂ mole fraction around 5 ° N (Fig. 5.9 (bottom)), which is a consequence of the correlation between the seasonal shift of the Intertropical Convergence Zone (ITCZ) and biosphere flux in the Tropics. It is also interesting to note that LMDz-NP and LMDz-SP give similar results in the Tropics and large differences from 45 ° N. Knowing that LMDz-NP and LMDz-SP uses the same deep convection mixing scheme and that deep convection is the main contributor to vertical mixing in the Tropics, it is not surprising to have similar results in these regions. However, in extra-tropics regions of the Northern Hemisphere vertical diffusion and mixing due to thermals have a significant impact on biospheric CO₂ mixing, especially over Siberia (not shown), where most of the rectifier applies in LMDz. Moreover, magnitudes of the physical trends due to vertical diffusion and thermals can be highly different between LMDz-NP and LMDz-SP at these latitudes, which can explain why these two configurations of LMDz simulate significantly different rectifier effects.

Unfortunately, large uncertainties still exist on the knowledge of the magnitude and of the spatial distribution of the actual rectifier effect. Indeed, observations of covariance signals between CO₂ flux and PBL mixing are lacking. Few studies have attempted to directly measure rectifier effects ([Yi et al., 2004](#); [Chen et al., 2004](#); [Stephens et al., 2013](#)). Although these studies bring very valuable knowledge on the rectifier effect at local scales, they cannot allow to draw conclusions on the magnitude of the rectifier effect at the global scale. In fact, [Yi et al. \(2004\)](#) compare the rectifier effect simulated by the CSU GCM (Colorado State University GCM) with observed rectifier forcing at a specific station in northern Wisconsin (USA). They conclude that the observed seasonal covariance between ecosystem CO₂ fluxes and PBL turbulent mixing are stronger than the same signals simulated by the CSU GCM. [Chen et al. \(2004\)](#) developed a Vertical Diffusion Scheme (VDS) to investigate the rectifier effect and validate their model with measurements at Fraserdale, Ontario, Canada. They conclude that the seasonal rectifier effect contribute largely to the total rectifier effect : 75 % of the total rectifier effect is due to the seasonal rectifier effect, while the rest is caused by the diurnal rectifier effect. On the contrary, [Stephens et al. \(2007\)](#) argue for a weak seasonal rectifier effect (see Fig. 7 in Supplement of [Stephens et al., 2007](#)).

Finally, one can hardly conclude from these incomplete pieces of information which version of LMDz better simulates the rectifier effect. However, these differences in the representation of the rectifier effect will definitely have large impacts on inverse estimates (see Sect. 5.4.5). Moreover, large efforts have been recently done to provide a global PBL climatology based on observations ([Seidel et al., 2012](#); [McGrath-Spangler and Denning, 2013](#)), which could also give valuable information on the PBL mixing. Thus, from such approaches, an observation-driven estimation of the actual magnitude of the rectifier effect could emerge soon, which will be very interesting for future evaluation of CTMs.

5.4.4.3 Stratosphere/Troposphere exchange (STE) using long-lived species

Exchanges between the stratosphere and troposphere may have large impacts on atmospheric concentrations of trace gases ([Holton et al., 1995](#)). [Thompson et al. \(2014\)](#)

show that it is especially true for N_2O since the major part of N_2O sink is located in the stratosphere (photolysis and oxidation by O^1D). Moreover, [Thompson et al. \(2014\)](#) compare the atmospheric distribution of N_2O as simulated by different CTMs with a focus on the representation of STE. They show that the Brewer–Dobson circulation is poorly simulated by LMDz, which badly resolves seasonal influence of STE on N_2O mole fractions. In [Patra et al. \(2011\)](#), focusing on CH_4 simulations, LMDz is also pointed out to simulate STE that is too fast compared to others CTMs with a wrong position of the tropopause (especially in the Tropics). These results exhibited in [Thompson et al. \(2014\)](#) and [Patra et al. \(2011\)](#) have been obtained using the physical parameterisations of TD configuration and with a low vertical resolution (19 levels). These two studies clearly identify the low vertical resolution of LMDz as a factor responsible for the poor STE representation. Moreover, [Hourdin et al. \(2012a\)](#), studying the impact of LMDz grid configuration on the climate, have shown that more vertical layers in the stratosphere leads to a better representation of stratospheric variability. Thus, one can hypothesize that by increasing the number of model layers from 19 to 39, with especially more layers in the PBL and above the tropopause, the model will better simulate exchange at the transition between troposphere and stratosphere.

To investigate this statement, we present comparisons of SF_6 burden computed for 4 boxes (stratosphere and troposphere in northern and Southern Hemisphere) between two LMDz 39-layers versions (NP-39 and TD-39) and one LMDz version using only 19 vertical layers (TD-19). The limit between stratosphere and troposphere has been set at 150 hPa in all simulations. Knowing that SF_6 is very well-mixed in the troposphere and in the stratosphere, one can evaluate STE efficiency by comparing the SF_6 burden (Table 5.5).

		Southern hemisphere	Northern hemisphere
Stratosphere	NP-39	7.4%	7.4%
	TD-39	7.4%	7.5%
	TD-19	10.8%	10.9%
Troposphere	NP-39	41.8%	43.4%
	TD-39	41.8%	43.4%
	TD-19	38.4%	39.9%

TABLE 5.5: Percentage (%) of the total atmospheric SF_6 burden computed in four boxes (Troposphere in the southern hemisphere, troposphere in the northern hemisphere, stratosphere in the southern hemisphere and stratosphere in the northern hemisphere) for two LMDz configurations using 39 levels (NP-39 and TD-39) and one another using 19 levels (TD-19).

First of all, it is found that differences between versions using different vertical resolutions are much larger than differences between LMDz versions using same vertical resolution but different physical parameterisations. Indeed, it is found that 10.9 % of total SF_6 atmospheric burden is present in the stratosphere of the Northern Hemisphere for TD-19, while only 7.4 % and 7.5 % is found in NP-39 and TD-39 simulations respectively. On the contrary, SF_6 atmospheric burden for NP-39 (43.4 %) and TD-39 (43.3 %) is larger in the troposphere of the Northern Hemisphere compared to TD-19 (39.9 %). Similar results are found for the Southern Hemisphere. Therefore exchange between the troposphere and stratosphere is slowed down with the 39-layers configuration of LMDz, which improves the flaw of LMDz regarding STE representation.

Moreover, we have computed the tropopause height using the method described in [Reichler et al. \(2003\)](#). Thus, the tropopause height is defined as the height at which the temperature lapse rate becomes less than 2 K km^{-1} . This is also the approach used

in Thompson et al. (2014). We find that TD-19, TD-39, SP-39 and NP-39 simulate tropopause height in the Tropics at 109, 105, 106 and 106 hPa respectively, which is consistent with the results found in Thompson et al. (2014). Indeed, they computed the tropopause height for 8 CTMs and they found that the tropopause height ranged from 101 to 106 hPa for 7 CTMs, while the tropopause height computed using LMDz (TD-19 configuration) was an outlier since it reached 109 hPa. Consequently, by improving vertical resolution from 19 to 39 levels, the tropopause height simulated by LMDz falls into the range of 7 CTMs simulating quite well STE (Thompson et al., 2014). Moreover, we assess here also that modifications on vertical resolutions impact much more the location of tropopause height than modifications on physical parameterisations.

Finally, these different results confirm that STE is improved in LMDz configurations using a finer vertical resolution (39 vs. 19 vertical levels).

5.4.4.4 Reactive species

Changes in the parameterisations of atmospheric processes in GCMs can also affect atmospheric chemistry (Mahowald et al., 1995). Indeed, Tost et al. (2010) have shown that the use of different sub-grid scale schemes affects atmospheric chemistry by changing both the meteorology (for example, modification of convection intensity) and chemistry (for example, modifications in location of the photochemical reactions). These different impacts on atmospheric chemistry cannot be tested with a passive tracer such as SF₆. Thus, we analyse now the impact of changes in the LMDz model on atmospheric methane (CH₄), a long-lived reactive greenhouse gas, which is mainly oxidized by hydroxyl radical (OH) in the troposphere (Kirschke et al., 2013). We ran simulations with the different configurations of LMDz to test this question.

Figure 5.10 shows 39 years of daily CH₄ mole fraction averaged at global scale and over the first layers of the atmosphere (between surface and 850 hPa) for TD, NP and SP configurations. The exact same setup is used for these simulations (climatological CH₄ emissions of 500 TgCH₄ year⁻¹, climatological oxidant fields and surface initial mean mole fraction of 1650 ppb). In the three simulations, the time series of CH₄ mole fraction exhibit typical seasonal cycles each year with a low during boreal summer and a high during boreal winter. Simulated seasonal cycles are very consistent between the three LMDz configurations. As emissions and sinks are climatological, CH₄ global mole fraction tends to reach a steady state. Indeed, TD and SP simulations annual CH₄ mole fraction tend to reach 1778 and 1775 ppb respectively after 30 years of simulations. The NP version, however, diverges from the SP and TD versions, with a steady state value of 1801 ppb being reached, around 25 ppb higher than TD and SP configurations. The use of different deep convection schemes could be responsible for such differences in CH₄ state equilibrium. Indeed, Lelieveld and Crutzen (1994) have shown the significant role of deep convection on the ozone tropospheric budget. However, as the TD and SP configurations give similar results, one can infer that in this study the difference is due to the implementation of the thermal plume model, which contributes to perturbing the chemical equilibrium of CH₄. In other words, the methane lifetime increases when the thermal plume scheme is activated. This increase has been assessed to be 0.2 years (2 % of the typical methane lifetime, Naik et al., 2013).

We further investigate the difference between NP/SP and TD CH₄ mole fractions. The chemical loss of methane is the product of a reaction rate k_{CH_4} , OH concentrations and CH₄ mole fraction. After investigation, we found that the difference of chemical equilibrium is mainly explained by the difference in the reaction rate, k_{CH_4} , which is lower in the mid-troposphere for NP compared to SP and TD. Indeed, the reaction rate depends on tropospheric temperature according to the Arrhenius law ($k_{CH_4} = A * \exp(-B/T)$, with $A = 2.45 * 10^{-12}$ and $B = 1775$ in the case of methane).

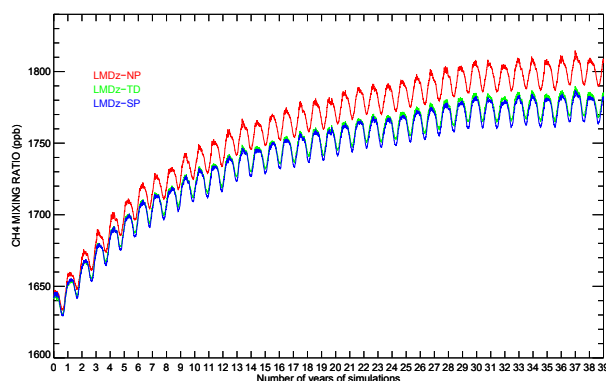


FIGURE 5.10: Time series of global-mean CH₄ dry mole fraction averaged between the surface and 850 hPa, for NP (red), SP (blue) and TD (green) for 39 years of simulation. Identical initial value (1650 ppb for CH₄ at the surface) and constant flux (500 Tg of CH₄ per year) are used in these simulations.

The cold temperature bias found in NP compared to SP and TD, as already shown in [Hourdin et al. \(2006\)](#), leads to a smaller consumption of methane by OH in the mid-troposphere for NP compared to SP and TD. In response, CH₄ steady-state mole fraction is higher in the NP configuration. Furthermore, this effect is amplified since the difference between the reaction rate for NP and TD is maximum around 700 hPa, where OH mole fractions are also maximum.

5.4.5 Conclusions and implications for inverse modelling of trace gas emissions and sinks

We have investigated the impacts of new physical parameterisations for deep convection ([Emanuel, 1991](#)) and boundary layer mixing due to vertical diffusion ([Yamada, 1983](#)) and thermal plumes ([Rio and Hourdin, 2008](#); [Rio et al., 2009](#)) recently implemented in the LMDz GCM on atmospheric transport and chemistry of different trace gases. First, a comparison between a one-dimensional version of LMDz and a Large Eddy Simulation of Meso-NH shows that the atmospheric transport of a short-lived tracer is greatly improved by the activation of the thermal plume model in a case of shallow convection over land. The combination of the deep convection scheme ([Tiedtke, 1989](#)) and vertical diffusion parameterisations ([Louis, 1979](#)) used in previous version of LMDz does not produce satisfactory results in the modelling of a growing boundary layer. Three dimensional simulations of ²²²Rn, a tracer of surface continental air masses, confirm an overall improvement in PBL dynamics when the new parameterisations for vertical diffusion and thermal plumes are implemented. In particular, the amplitude and phase of the diurnal radon signal is found to be much better reproduced when the thermal plume scheme is used. However, the higher variability of concentrations in NP simulations increase the sensitivity of the results to external meteorological forcings.

These results for the PBL are encouraging for future atmospheric inversions of greenhouse gas emissions. When integrated in our inversion framework, this new version of LMDz will allow us to assimilate a larger fraction of the high-frequency data (daily, and maybe hourly) sampled at surface stations located close to source areas, which often show large peaks of concentrations on hourly to weekly timescales. Such data not well simulated by the previous version of LMDz-SACS and therefore are either

removed or associated with a very large uncertainty in the inverse procedure. However, the higher sensitivity of NP version to the external forcing (see Sect. 5.4.3.2) may cause inadequate optimized fluxes if observation errors integrated into the inverse system are not consistently estimated. Indeed, one outcome of this work is that the transport model part of the observation error used for one observation in the inversion can largely depend on the configuration of the model used. Furthermore, a comparison of observation errors integrated into three different inverse systems for methane flux estimation has shown that observation errors are often under-estimated which exacerbate the impact of transport model errors on optimized fluxes (Locatelli et al., 2013). Thus, it will be essential to put a lot of attention on the estimation of observation errors when configuring PYVAR inversion system with the new version of LMDz model.

The skill of LMDz to represent large-scale transport has also been studied using a long-lived trace gas (SF_6). General transport pathways show similar behaviours between the different configurations of LMDz studied here. However, a few differences are noticeable. First, it is shown that use of the Emanuel deep convection scheme results in a small increase in the IH SF_6 gradient, although the gradient simulated by the NP version of LMDz is still too weak compared to observations. Moreover, the combination of thermal plume model with the Emanuel scheme in LMDz-NP leads to a stronger rectifier effect compared to LMDz-TD. Second, the stratosphere–troposphere exchange is largely improved by an increase in the vertical resolution (from 19 to 39 layers). Third, the thermal plume model plays an indirect role on the atmospheric loss of reactive species by modifying the vertical temperature distribution which has a significant impact on reaction rates, and therefore on the lifetime of reactive compounds such as methane.

In global inversions, these changes in large-scale transport have potentially large impacts on the derived fluxes. For example, IH exchange is fundamental to derive reasonable balance between northern and Southern Hemisphere emissions. In particular, Locatelli et al. (2013) have shown that CTMs with IH exchange time that is too fast, as is the case with the TD version of LMDz, derive methane emissions with positive (negative) bias in the northern (southern) hemisphere. Here, configurations of LMDz using the Emanuel scheme (NP and SP) simulate IH exchange slightly slower than the old version of LMDz. As a consequence, we expect to derive smaller north vs. south biases in inversions using NP and SP. Additionally, it has been found that the rectifier effect, which mainly impacts CO_2 , is stronger in NP. Thus, a larger mid-latitude CO_2 sink and a weaker tropical source are expected to be found by the inverse system using NP configuration (Stephens et al., 2007; Gurney et al., 2002). Moreover, tropospheric reactive gas distributions, which can be affected by stratosphere–troposphere exchange (such as N_2O ; Thompson et al., 2014), are expected to be improved. As a consequence, inversions based on tropospheric measurements of these gases are expected to derive less biased fluxes.

Changes in the modelled atmospheric lifetimes exhibited by reactive species like methane could lead to new biases in atmospheric concentrations, potentially influencing flux estimates from inversion studies. One could consider that a very slight nudging of temperature could reduce this bias. However, this possibility may be moderated by the risk of partly removing convection mixing when stabilizing the temperature profile and by the fact that the OH mean value is also poorly known (Prinn, 2005; Montzka et al., 2011) : the bias in reaction falls within the large uncertainty range of the mean OH concentration (Naik et al., 2013).

Finally, this work has been driven by the need to reduce the impact of transport model errors in global inversions for estimation of greenhouse gas emissions and sinks. Such efforts are required in order to avoid a situation where CTM weaknesses become the main limiting factor in the reduction of uncertainties in the estimates of greenhouse

gas emissions.

5.4.6 Acknowledgements

Robin Locatelli is supported by DGA (Direction Générale de l'Armement) and by CEA (Centre à l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives). The LMDz simulations were done using computing resources provided by the CCRT/GENCI computer center of the CEA. We would like to thank Rebecca Fisher, Ingeborg Levin, Juha Hatakka and Ernst Brunke for their contributions to produce measurements of Radon-222 at Egham, Heidelberg, Pallas and Cape Point stations. We would also like to thank Frédéric Chevallier for fruitful discussions.

5.5 Etudes complémentaires

Poursuivant l'étude de la modélisation du transport atmosphérique dans LMDz, je propose ici les résultats de deux projets (l'expérience TransCom-BLH et le projet InGOS) d'intercomparaison de simulations de la hauteur de la couche limite et de la concentration atmosphérique de ^{222}Rn . Pour ces deux projets, j'ai réalisé les simulations pour les différentes versions du modèle LMDz. Les résultats d'intercomparaisons présentés dans les sections suivantes ont été rendus possibles grâce au travail de Andy Jacobson et Ute Karstens, qui ont mis en commun et analysé les simulations des différents modèles, pour respectivement l'expérience TransCom-BLH et le projet InGOS.

5.5.1 Simulations de la hauteur de couche limite

5.5.1.1 L'expérience TransCom-BLH

L'idée de cette comparaison de hauteurs de couche limite (PBLH) simulées par différents modèles de transport avec des PBLH observées est née des travaux de Seidel et al. (2010); Seidel et al. (2012). En effet, Seidel et al. (2010) ont insisté sur le manque de données disponibles de la hauteur de la couche limite à l'échelle globale, alors que de nombreux domaines (climat, météorologie, qualité de l'air, etc.) sont dépendants d'une bonne représentation de la PBLH. Seidel et al. (2010) ont alors construit une base de données de hauteurs de couche limite calculées à partir de paramètres thermodynamiques mesurés lors de radiosondages. Ces PBLH mesurées sont disponibles dans la base de données IGRA (Integrated Global Radiosonde Archive, <http://www.ncdc.noaa.gov/oa/climate/igra/>). La communauté TransCom a alors conçu l'expérience TransCom-BLH, menée par Andy Jacobson de la NOAA (National Oceanic and Atmospheric Administration), pour exploiter ces précieuses données et permettre une meilleure connaissance des capacités des modèles de transport à représenter la PBLH.

Ainsi, la hauteur de la PBL a été simulée à environ 1000 stations autour du monde à 00h et 12h UTC entre 1970 et 2010, en exploitant la méthode de Vogelesang and Holtslag (1996) qui repose sur la détermination de la PBLH grâce au calcul du nombre de Richardson, Ri_b .

$$Ri_b = \left(\frac{g}{\theta_{vs}} \right) \frac{(\theta_{vh} - \theta_{vs})(h - z_s)}{(u_h - u_s)^2 + (v_h - v_s)^2}$$

Le dénominateur ($u_h; v_h$ et $u_s; v_s$ représentent respectivement les composantes horizontales du vent au niveau h et du vent à la surface) représente la production de turbulence par le cisaillement de vent. Le numérateur représente la destruction de turbulence par la flottabilité. θ_{vs} et θ_{vh} représentant respectivement la température potentielle virtuelle à la surface et au niveau h . Les valeurs de Ri_b sont scannées depuis la surface et la hauteur de la PBL est atteinte lorsque Ri_b dépasse 0.25. Ces PBLH simulées ont alors été comparées avec les PBLH mesurées et stockées dans la base de données IGRA.

Les figures 5.11 montrent la différence de la hauteur de la PBL simulée par LMDz-NP aux différentes stations de mesures à la surface de la Terre avec les données IGRA à 00h (à gauche) et 12h UTC (à droite).

A 12h UTC, il apparaît clairement que la PBLH est surestimée sur les continents où le rayonnement solaire incident est maximal (Europe, Afrique). Cette surestimation de la PBLH par LMDz-NP peut atteindre jusqu'à 1000m. Les stations sous une influence maritime (notamment en Europe de l'ouest) simulent des PBLH sous-estimées de l'ordre de 500m comparées aux données IGRA. A 00h UTC, la surestimation de la

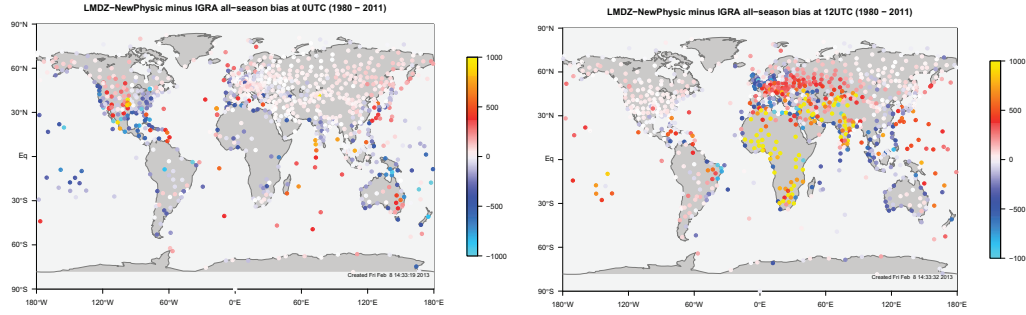


FIGURE 5.11: Comparaison de la moyenne annuelle de la hauteur de la couche limite simulée par LMDz-NP avec les données IGRA à 00h UTC (à gauche) et à 12h UTC (à droite).

PBLH en Europe centrale apparaît plus faible (inférieure à 200m), mais l'amplitude des PBLH à cette heure-ci est nettement plus faible. Sur la partie centrale du continent nord-américain (où le rayonnement solaire incident est encore important à 00h UTC), on remarque une surestimation des PBLH du même ordre de grandeur qu'en Europe centrale à 12h UTC.

Les figures 5.12 montrent le cycle saisonnier de la PBLH pour l'ensemble des modèles de l'expérience TransCom à 00h (à gauche) et à 12h UTC (à droite). Trois versions de LMDz sont mises en évidence : LMDz-NP (vert), LMDz-TD (bleu) et LMDz-NP (rouge) avec une résolution horizontale plus fine ($2.5^\circ \times 1.25^\circ$). Les autres courbes en rouge clair représentent les résultats des simulations pour chacun des autres modèles considérés dans l'expérience TransCom-BLH. Pour une meilleure clarté de ces figures, seuls les résultats des stations proches du méridien de Greenwich ont été sélectionnés (Europe de l'ouest, Afrique).

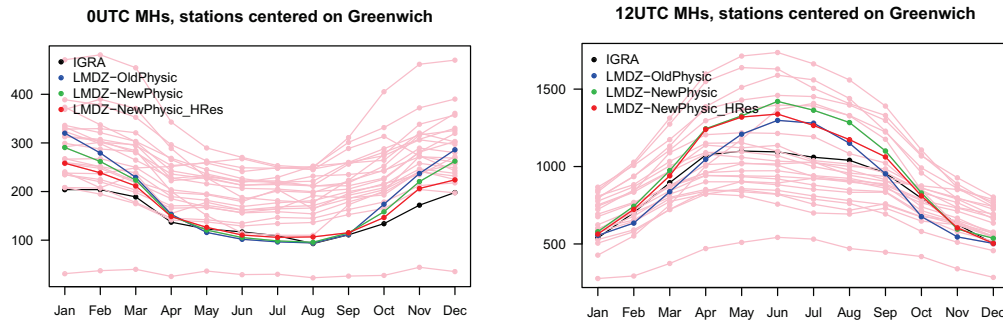


FIGURE 5.12: Comparaison du cycle saisonnier de la hauteur de PBL simulée par différents modèles TransCom avec les mesures de la PBLH reconstruites en utilisant les données IGRA. Les résultats sont exposés pour les stations localisées autour du méridien de Greenwich et, pour 00h UTC (à gauche) et pour 12h UTC (à droite). LMDz-TD, LMDz-NP et LMDz-NP (résolution de $2.5^\circ \times 1.25^\circ$) sont respectivement représentés en bleu, vert et rouge. Les autres courbes en rouge clair sont représentatifs des autres modèles de l'expérience TransCom-BLH.

A 12h UTC, on se rend compte qu'il y a une très grande dispersion entre les modèles, même si aucun biais ne semble partagé par l'ensemble des modèles. En effet, la

PBLH moyenne simulée par l'ensemble des modèles en juin est comprise entre 700m et 1600m (à l'exception d'un modèle extrême simulant une PBLH autour de 500m), alors que la PBLH mesurée est légèrement supérieure à 1000m. Les trois versions de LMDz surestiment les PBLH des stations centrées autour du méridien de Greenwich d'avril à septembre et sont nettement plus en accord (notamment les deux versions de LMDz-NP) avec les données entre octobre et mars. A 00h UTC, il est indiscutable que la majorité des modèles surestime la hauteur de la PBL. Cette surestimation peut atteindre jusqu'à 300m. Cependant, les trois versions de LMDz sont en très bon accord avec les données IGRA entre avril et septembre. A la fin de l'automne et en hiver, les trois versions de LMDz surestiment légèrement la PBLH (environ 100m).

Les cartes planétaires des PBLH simulées par LMDz-NP et LMDz-TD pour un mois d'été (août) et un mois d'hiver (janvier) à 00h et 12h UTC sont montrées en Annexe A. Les cartes des différences entre les PBLH simulées et les PBLH mesurées, issues des données IGRA, sont également présentées.

5.5.1.2 Le projet InGOS (Integrated non-CO₂ Observing System)

Contrairement à l'expérience TransCom-BLH, le projet InGOS s'est focalisé exclusivement sur les simulations de PBLH en Europe de l'ouest.

Deux jeux de données sont disponibles pour valider la hauteur de couche limite dans cette intercomparaison. Le premier jeu de données est basé sur des mesures lidars. En effet, la hauteur de la PBL peut être retrouvée en analysant le signal rétro-diffusé d'un lidar et/ou célomètre par la présence d'aérosols dans la couche limite. Ces dernières années, de nombreux lidars ont été déployés par les services météorologiques nationaux fournissant potentiellement des mesures de la PBL à une haute fréquence temporelle (Pal et al., 2013). Cependant, les algorithmes d'extraction de la hauteur de la PBL sont dans certains cas toujours en développement et les jeux de données ne sont pas entièrement harmonisés. Dans cet exercice d'intercomparaison, seules les hauteurs de PBL extraites des signaux lidars pour le site de Cabauw (de 2006 à 2009) et de Trainou (pour 2011) ont pu être exploitées. Le deuxième jeu de données de hauteur de PBL provient de l'exploitation des radiosondages météorologiques à l'échelle mondiale, comme pour l'expérience TransCom-BLH (données IGRA évoquées précédemment).

Contrairement à l'expérience TransCom-BLH, les autres modèles utilisés dans ce projet sont des modèles régionaux avec des résolutions beaucoup plus fines que LMDz. De plus, l'ensemble des modèles, sauf LMDz, utilisent directement les champs de vents réanalysés (LMDz utilise les champs ERA-Interim sous forme de guidage avec une constante de rappel), comme ERA-Interim, où les données de radiosondages utilisées pour constituer la base de données IGRA ont été assimilées. Dans ce projet, on se concentre principalement sur les résultats obtenus à une dizaine de stations, ce qui permet de détecter des impacts d'effets météorologiques locaux qui étaient indiscernables sur l'analyse globale de l'expérience TransCom-BLH.

Cycle saisonnier

Les figures 5.13 et 5.14 montrent le cycle saisonnier moyen entre 2007 et 2011 de la PBLH respectivement en journée et durant la nuit pour les différents modèles participant au projet InGOS et comparé aux données lidar (courbes noires) et IGRA (points noirs).

Durant le jour, on remarque un cycle saisonnier fort pour les stations continentales avec un maximum en été quand le mélange vertical induit par le chauffage thermique du sol est important. Pour les stations côtières (Mace Head et Lutjewad), la hauteur de la PBL est quasiment constante au cours de l'année. On retrouve, ici, l'une des caractéristiques

Figure 5: Mean seasonal cycle of (a) daytime and (b) nighttime mixing heights in the transport models (for 2007-2011) and lidar-derived mixing heights at Cabauw (for 2007-2011) and Trainou (for 2011). Radiosonde-derived mixing heights (for 2007-2010) at the nearest IGRA station are also included where available.

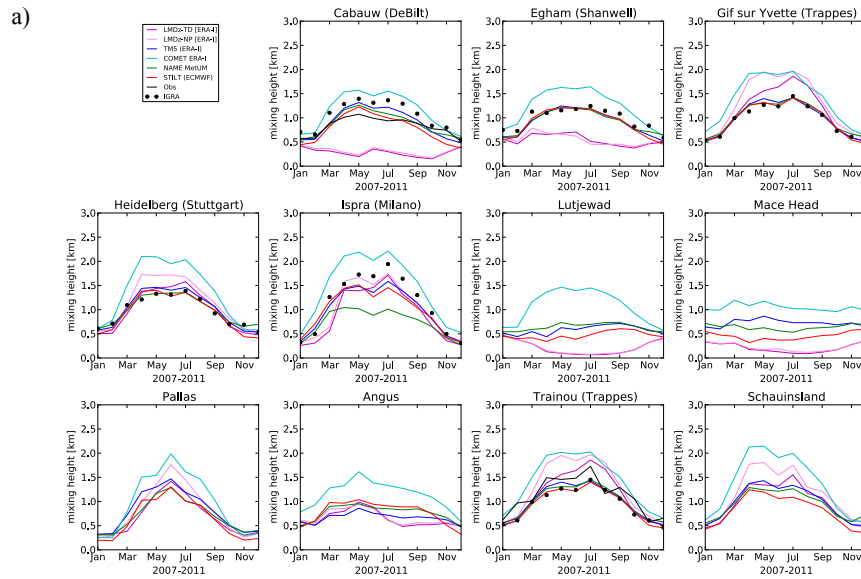


FIGURE 5.13: Cycle saisonnier moyen de la hauteur de la couche limite en journée pour différents modèles de transport et comparé à des PBLH reconstruites à partir des mesures lidar ou des données IGRA.

des PBL impactées par un air marin. De très grands écarts entre modèles apparaissent. En été, ces écarts peuvent quasiment atteindre 1 kilomètre, comme on le voit à Trainou ou à Heidelberg. Les simulations de la PBLH à Cabauw et à Egham pour LMDz-TD et LMDz-NP ne sont pas en accord avec les mesures et les autres modèles. Ces écarts s'expliquent probablement par le fait que LMDz a une résolution horizontale beaucoup plus importante que les autres modèles du projet InGOS. De plus, LMDz est le seul modèle du projet à utiliser un nudging des vents horizontaux. Les autres modèles utilisent directement les champs de vent réanalysés (ERA-Interim par exemple). Dans le papier présenté en section 5.4, il a été montré que les concentrations de ^{222}Rn simulées par LMDz pouvaient être irréalistes lorsque les paramètres de surface étaient mal calés. On retrouve ce résultat ici puisque le nudging des champs de vent horizontaux seulement ne permet pas de simuler correctement les paramètres de surface dans la zone autour de Cabauw et Egham et mène à des simulations irréalistes de la PBLH. Durant la nuit (figure 5.14), le cycle saisonnier est quasiment inexistant. On remarque tout de même des valeurs de PBLH légèrement plus grandes en hiver lorsque le module de vent est généralement plus fort. On remarque également un fort désaccord entre les mesures indirectes de la PBLH à partir des données de radiosondages et les mesures lidar lorsqu'elles sont disponibles (à Cabauw et à Trainou par exemple). Haefelin et al. (2012) ont évoqué les fortes incertitudes qui existent sur les données lidar pendant la nuit et le désaccord trouvé ici entre les deux types de mesures semble confirmer cela. Les cycles saisonniers moyens de la PBLH à 00h et 12h UTC sont montrés pour d'autres stations d'Europe en Annexe B.

Cycle diurne

Les figures 5.15 et 5.16 présentent la comparaison du cycle diurne de la PBLH respectivement en hiver et en été, simulées par différents CTMs avec les données IGRA et lidar.

En hiver (figure 5.15), le petit nombre de données disponibles empêche de tirer

b) Figure 6: Mean diurnal cycle of mixing heights during (a) Summer (JJA) and (b) Winter (DJF) in the transport models (for 2007-2011) and lidar-derived mixing heights at Cabauw (for 2007-2009) and Trainou (for 2011). Radiosonde-derived mixing heights (for 2007-2010) at the nearest IGRA station are also included where available.

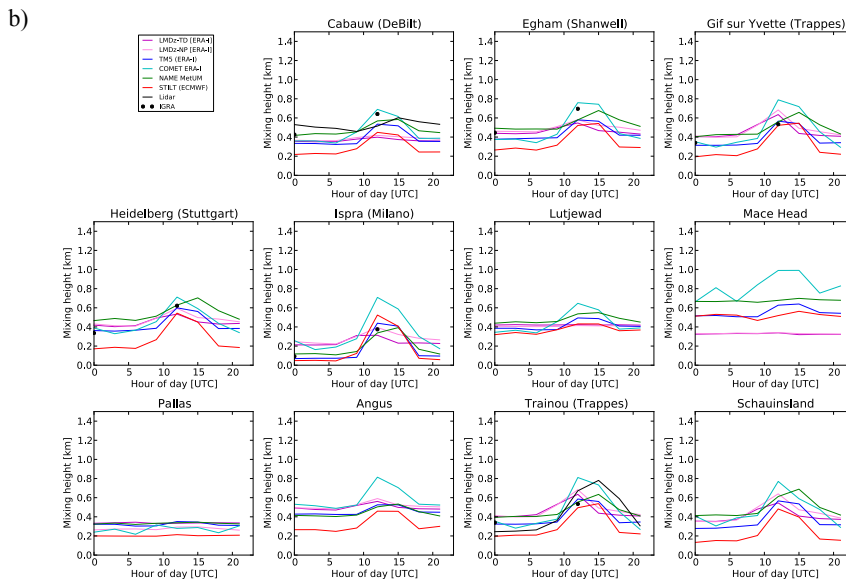
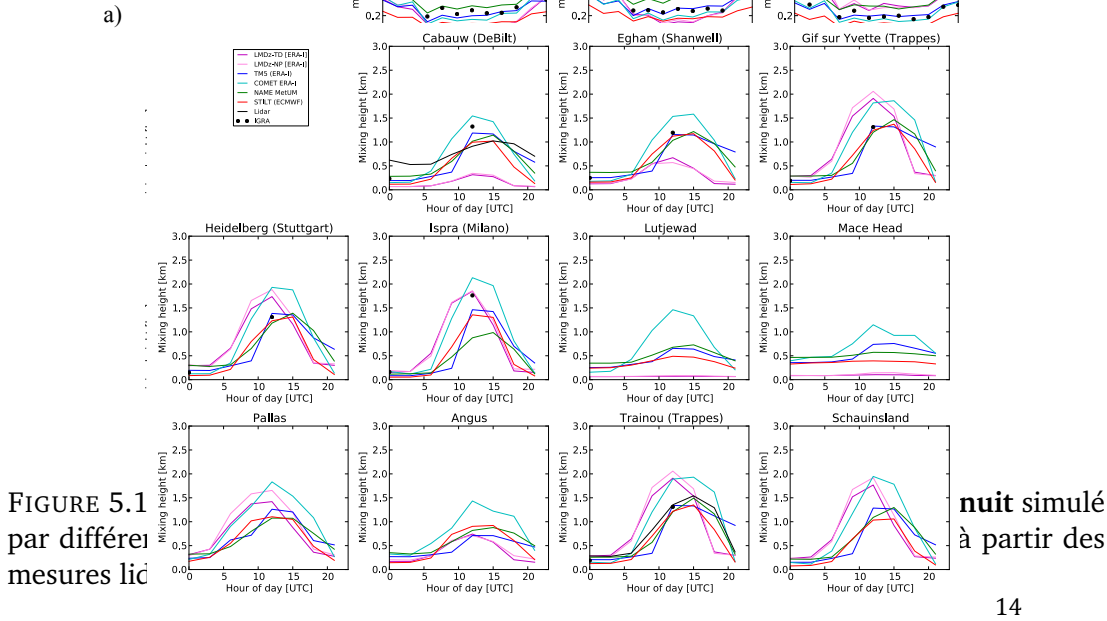


FIGURE 5.15: Cycle diurne moyen de la hauteur de la couche limite **en hiver** simulé par différents modèles de transport et comparé à des PBLH reconstruites à partir des mesures lidars (à Cabauw et Trainou seulement) ou des données IGRA.

des conclusions définitives. Cependant, on note que les différences dans l'amplitude et la phase du cycle diurne de la PBLH simulée par différents modèles atteignent respectivement jusqu'à 700 mètres et 3 heures. Le maximum moyen aux sites continentaux atteint 800 mètres.

En été (figure 5.16), on retrouve le comportement différent de LMDz à Cabauw et Egham, comme on l'a souligné dans le paragraphe précédent. De plus, LMDz tend à démarrer trop tôt la croissance de la PBLH aux stations testées. La comparaison des

résultats de tous les modèles montre que l'amplitude et la phase du cycle diurne de la PBLH diffèrent jusqu'à 1000 mètres et 3 heures en été. De plus, le maximum moyen aux sites continentaux est compris entre 1000m et 2000m en été et la PBLH de nuit varie entre 100 et 300 mètres.

Figure 6: Mean diurnal cycle of mixing heights during (a) summer (JJA) and (b) winter (DJF) in the transport models (for 2007-2011) and lidar-derived mixing heights at Cabauw (for 2007-2009) and Trainou (for 2011). Radiosonde-derived mixing heights (for 2007-2010) at the nearest IGRA station are also included where available.

a)

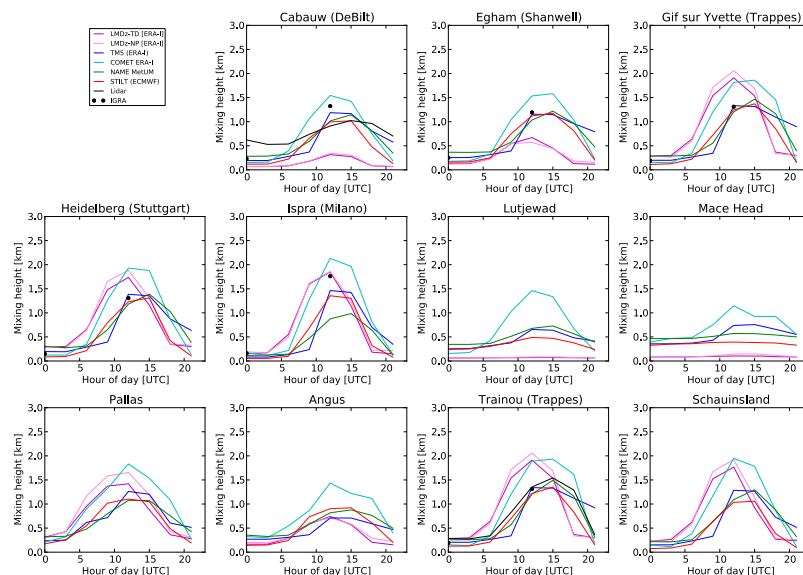
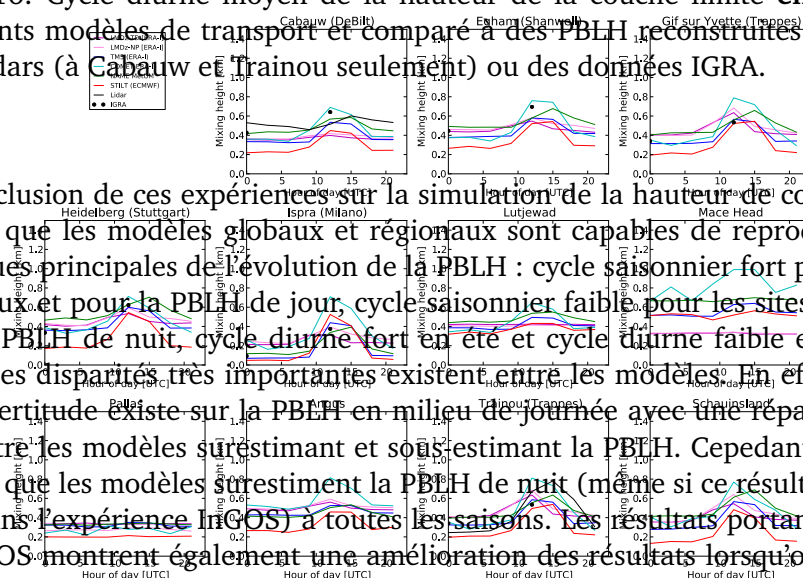


FIGURE 5.16: Cycle diurne moyen de la hauteur de la couche limite en été simulé par différents modèles de transport et comparé à des PBLH reconstruites à partir des mesures lidars (à Cabauw et Trainou seulement) ou des données IGRA.

b)



En conclusion de ces expériences sur la simulation de la hauteur de couche limite, il apparaît que les modèles globaux et régionaux sont capables de reproduire les caractéristiques principales de l'évolution de la PBLH : cycle saisonnier fort pour les sites continentaux et pour la PBLH de jour, cycle saisonnier faible pour les sites océaniques et pour la PBLH de nuit, cycle diurne fort en été et cycle diurne faible en hiver. Cependant, des disparités très importantes existent entre les modèles. En effet, une très grande incertitude existe sur la PBLH en milieu de journée avec une répartition équivalente entre les modèles surestimant et sous-estimant la PBLH. Cependant, il apparaît clairement que les modèles surestiment la PBLH de nuit (même si ce résultat est moins flagrant dans l'expérience InGOS) à toutes les saisons. Les résultats portant sur l'expérience InGOS montrent également une amélioration des résultats lorsqu'on utilise des modèles régionaux.

Concernant LMDz, il apparaît que la PBLH d'après-midi est surestimée par LMDz-TD et LMDz-NP. La surestimation semble légèrement plus marquée lorsque le modèle du thermique est utilisée. La PBLH pouvant être fortement influencée par des représentations précises des conditions locales des paramètres de surface, il est montré que la résolution et le nudging des champs de vent horizontaux peuvent ne pas suffire à simuler correctement la PBLH dans certaines régions (comme autour de Cabauw (nord des Pays-bas) et Egham (sud de l'Angleterre)).

Il est également important de signaler que la hauteur de la couche limite est un diagnostic du mélange dans cette basse couche de l'atmosphère. Ce mélange affecte directement les concentrations simulées de gaz émis en surface (comme le radon ou le méthane) et les estimations de ces émissions par modélisation inverse. Cependant, il

me semble important de garder à l'esprit que pour avoir une meilleure connaissance des processus participant au mélange dans la couche limite dans LMDz, il est plus efficace de regarder directement les tendances des concentrations dues aux différents processus comme cela a été fait dans la section 5.4.

5.5.2 Simulations de la concentration de radon-222

Au sein du projet InGOS, j'ai également participé à une intercomparaison des capacités des modèles de chimie-transport à simuler la concentration de ^{222}Rn dans l'atmosphère. Une partie des simulations qui ont alimenté ce projet, ont été présentées dans la section 5.4. Ici, les simulations de LMDz sont comparées avec 5 autres modèles et avec des mesures à environ 10 stations situées en Europe de l'ouest.

Cycle saisonnier

La figure 5.17 donne une représentation du cycle saisonnier des concentrations de ^{222}Rn en exposant les séries temporelles de la moyenne mensuelle du minimum journalier des concentrations de ^{222}Rn à différentes stations de surface. On remarque que la forme du cycle saisonnier est la même aux différentes stations de surface avec des concentrations relativement basses en été quand le mélange vertical est le plus intense. Le pic observé en novembre 2011 est expliqué par une accumulation de ^{222}Rn dans la couche limite due à un système de haute pression très stable qui est resté plusieurs semaines au dessus de l'Europe centrale et de l'Europe de l'ouest.

Figure 5.17: Modelled and observed monthly mean of daily minimum ^{222}Rn concentrations at all sites. Model simulations based on the new ^{222}Rn emission map (full lines) and simulations based on constant ^{222}Rn fluxes (dashed lines).

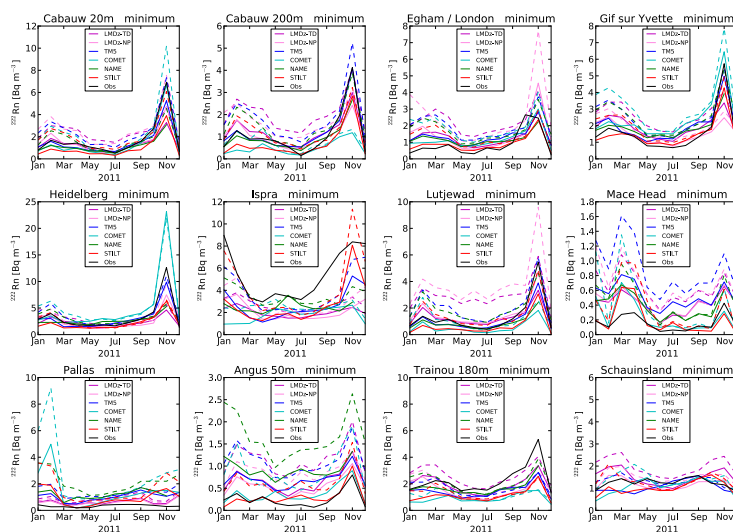


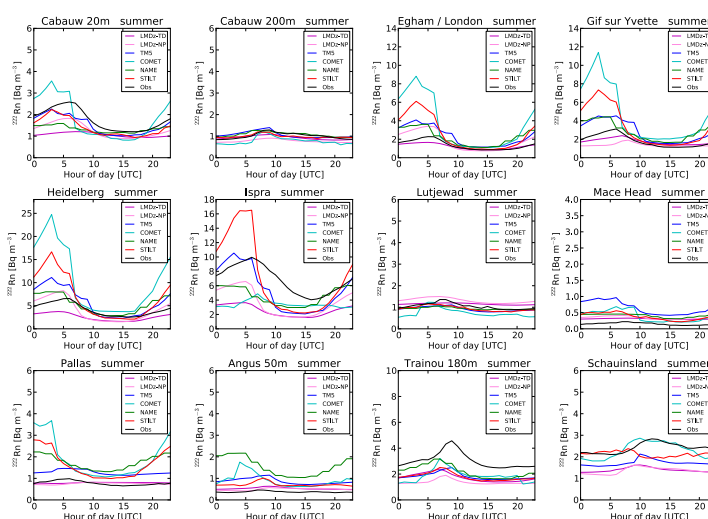
FIGURE 5.17: Moyenne mensuelle des minimums journaliers de la concentration de ^{222}Rn à différentes stations de surface simulées par 6 modèles et mesurées. Les traits pleins et pointillés sont respectivement représentatifs du flux de surface raffiné et constant (voir section 5.4).

De manière générale, l'ensemble des modèles reproduit assez bien le cycle saisonnier des concentrations de ^{222}Rn , et d'autant mieux lorsque le flux raffiné est utilisé (traits pleins). La version LMDz-NP simule un cycle saisonnier légèrement plus prononcé que la version LMDz-TD.

Cycle diurne

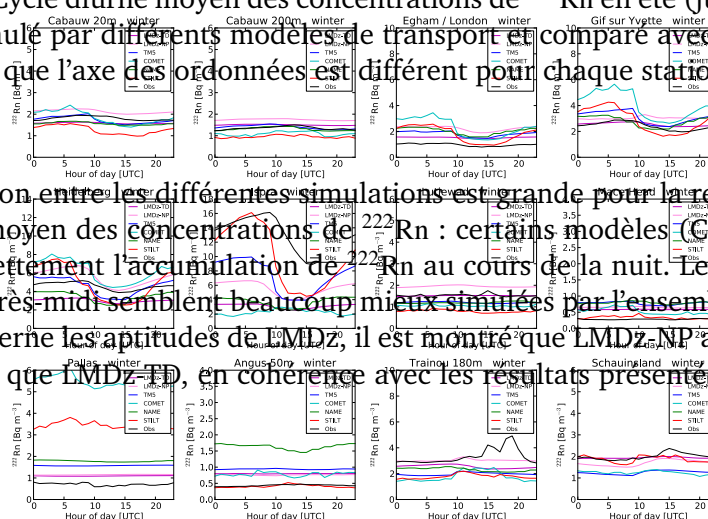
Une comparaison modèles-données du cycle diurne moyen des concentrations de surface de ^{222}Rn en été (juin, juillet, août) est exposée sur la figure 5.18. Aux stations continentales, on remarque un fort cycle diurne avec des concentrations maximales à la fin de la nuit et des valeurs minimales au cours de l'après-midi quand la couche limite est bien mélangée. Au sommet des hautes tours (Trainou 180m, Cabauw 20m et Cabauw 200m), le cycle diurne a une amplitude plus faible et est décalé de quelques heures. En effet, le ^{222}Rn accumulé dans la PBL au cours de la nuit n'atteint le niveau de mesure des hautes tours qu'à partir du moment où la couche limite se développe au cours de la matinée. Au cours de la nuit, les concentrations mesurées au sommet de la tour sont généralement découplées de la surface puisque le sommet de la tour est principalement influencé par la troposphère libre. A Schauinsland, une station de montagne, le cycle diurne est opposé : les concentrations sont fortes en milieu de journée et faibles au cours de la nuit. Le phénomène météorologique de brise de pente/brise de vallée explique cette particularité.

a)



b)

FIGURE 5.18: Cycle diurne moyen des concentrations de ^{222}Rn en été (juin, juillet, août) pour 2011 simulé par différents modèles de transport et comparé avec des mesures de ^{222}Rn . A noter que l'axe des ordonnées est différent pour chaque station.



La dispersion entre les différentes simulations est grande pour la représentation du cycle diurne moyen des concentrations de ^{222}Rn : certains modèles (COMET et STILT) surestiment nettement l'accumulation de ^{222}Rn au cours de la nuit. Les concentrations de milieu d'après-midi semblent beaucoup mieux simulées par l'ensemble des modèles. En ce qui concerne les aptitudes de LMDZ, il est montré que LMDZ-NP a un cycle diurne plus prononcé que LMDZ-TD, en cohérence avec les résultats présentés dans la section 5.4.

Conclusions du chapitre

Ce chapitre témoigne de la volonté d'améliorer les aptitudes de la branche « Transport Atmosphérique » du modèle LMDz, dans le but, in fine, d'intégrer ces nouveautés au système inverse, PYVAR-LMDz-SACS. En effet, la composante transport du système inverse basé sur le modèle LMDz est restée figée sur une version de LMDz disponible à la fin des années 90. Une quinzaine d'années après, il est devenu essentiel de mettre à jour cette version pour bénéficier des développements récents de LMDz et pour réduire au maximum les impacts des erreurs de modélisation sur les estimations basées sur la modélisation inverse. Sur ce point-là, les résultats sont encourageants puisqu'il a été montré, dans ce chapitre, que les nouvelles paramétrisations physiques implémentées dans le modèle LMDz (nouveau schéma de convection profonde, nouveau schéma de diffusion verticale turbulente et modèle des thermiques) ont permis d'augmenter fortement le réalisme du transport atmosphérique en :

- améliorant significativement le mélange dans la couche limite grâce à la combinaison du modèle des thermiques avec le schéma de diffusion verticale turbulente de [Yamada \(1983\)](#)
- augmentant le temps de transport entre les deux hémisphères, qui était connu pour être trop rapide dans l'ancienne version de LMDz. Ceci a été permis grâce à l'utilisation du schéma de convection profonde de [Emanuel \(1991\)](#)
- améliorant le gradient à la transition entre la troposphère et la stratosphère grâce à une résolution verticale plus fine (passage de 19 à 39 niveaux verticaux)

Le travail exposé dans ce chapitre visant à évaluer et mieux comprendre les caractéristiques de différentes versions du modèle de transport basées sur LMDz avant de l'intégrer dans le système inverse. A l'issue de ce chapitre, nous disposons de trois versions de LMDz : la version originale (LMDz-TD, dans une résolution horizontale et verticale améliorée par rapport à la version du début de thèse), une version avec un nouveau schéma de convection profonde (LMDz-SP) et une version intégrant une nouvelle représentation de la couche limite (LMDz-NP). Nous allons maintenant mettre en oeuvre ces trois versions dans le système d'inversion PYVAR-LMDz-SACS afin d'optimiser les sources et puits de méthane pour la période 2006-2012.

Estimation des sources et puits de méthane entre 2006 et 2012 : bilan et influence du transport atmosphérique

DANS CE CHAPITRE, on présente l'estimation des flux de méthane par modélisation inverse pour la période 2006-2012, obtenue grâce à un nouveau système inverse dont le modèle de chimie-transport a subi une importante mise à jour par rapport à la version du modèle utilisée originellement dans [Chevallier et al. \(2005\)](#). Ces modifications ont été analysées dans le chapitre précédent à travers plusieurs simulations « directes » de différents gaz atmosphériques (^{222}Rn , SF_6 , CH_4 et CO_2) choisis selon la caractéristique du transport que l'on voulait étudier plus précisément. Il a été montré que plusieurs caractéristiques de la nouvelle version du modèle, LMDz-NP, semblait pouvoir améliorer les estimations des sources et puits de méthane par modélisation inverse. Nous utiliserons également deux autres versions de LMDz intermédiaires (LMDz-TD et LMDz-SP) entre cette nouvelle version et la version qui était utilisée au début de ma thèse (LMDz-19). Ces différentes versions sont décrites dans le chapitre précédent et nous offre l'occasion unique d'utiliser un même système inverse avec des versions différentes mais évaluées précisément du même modèle de transport. Une originalité des résultats proposés dans ce chapitre est qu'ils sont éclairés par les différentes versions du modèle de transport disponibles, qui permettent de qualifier, au moins partiellement, la robustesse des estimations proposées vis à vis des erreurs de transport. Cette approche complète l'étude proposée au chapitre 4 pour laquelle nous disposons de 9 modèles de transport différents mais sans accès à la physique des modèles pour comprendre les mécanismes de transport expliquant les différences trouvées.

Dans un premier temps, on revient brièvement, dans la section 6.1, sur les développements nécessaires pour la mise à jour du système inverse PYVAR et on donne quelques chiffres pour comparer les performances des différents systèmes inverses. Une description des inversions réalisées dans ce chapitre est également présentée. Dans un second temps, on présente l'estimation des flux de méthane à l'échelle planétaire pour l'année 2010, année commune aux différents jeux de données atmosphériques utilisées dans les différentes inversions (section 6.2). L'analyse de la sensibilité des résultats de l'inversion pour l'année 2010 aux différentes versions du modèle de transport atmosphérique fait l'objet du 3^e article de cette thèse (en préparation) dont la version actuelle est présentée dans ce chapitre (section 6.3). Ensuite, on présente la variabilité interannuelle (section 6.5) et les tendances (section 6.6) des émissions de méthane inversées entre 2006 et 2012 grâce aux différentes inversions menées au cours de

cette thèse. Les principales anomalies des émissions de méthane optimisées pour cette période sont alors discutées aux échelles planétaire, hémisphériques et régionales. On propose également une évaluation des inversions dans la section 6.7 avec des comparaisons à des mesures de surface, des profils verticaux et des simulations issues d'un modèle biogéochimique. Finalement, la section 6.8 présente des résultats sur le puits chimique de CH_4 par le radical OH obtenu dans les différentes inversions.

6.1 Mise à jour du système inverse et inversions réalisées

6.1.1 Présentation du nouveau système inverse

Les résultats encourageants, présentés dans le chapitre 5, obtenus pour la modélisation directe des concentrations atmosphériques de méthane nous ont poussés à modifier le système inverse, PYVAR-LMDz-SACS, pour bénéficier de ces améliorations. Les principales modifications apportées au système inverse sont :

- augmentation de la résolution verticale : passage de 19 à 39 niveaux pour représenter la structure verticale de l'atmosphère
- légère augmentation de la résolution horizontale en latitude : passage de 73 à 96 points de grille
- nouvelle paramétrisation de la convection profonde : remplacement du schéma de Tiedtke (1989) par celui d'Emanuel (1991)
- nouvelle paramétrisation de la diffusion verticale turbulente : remplacement du schéma de Louis (1979) par celui de Yamada (1983)
- ajout du modèle des thermiques (Hourdin et al., 2002; Rio and Hourdin, 2008)

Ces modifications ont permis une importante mise à jour de la structure (raffinement de la résolution verticale et horizontale) et des paramétrisations physiques (nouvelles paramétrisations pour la diffusion turbulente, la convection profonde et ajout du modèle des thermiques) du système inverse opérationnel au LSCE. La rapide évolution du modèle de climat LMDz au cours des années 2000 nous a permis de développer trois systèmes inverses différents basés sur les trois versions de LMDz (LMDz-TD, LMDz-SP et LMDz-NP) décrites dans le chapitre 5. Ces trois systèmes inverses possèdent chacun des améliorations bien précises par rapport au système inverse originel de Chevallier et al. (2005). Comme le montre le schéma 6.1, PYVAR-LMDz-TD-SACS possède une meilleure résolution verticale et horizontale que la version PYVAR-LMDz-SACS de Chevallier et al. (2005). PYVAR-LMDz-SP-SACS utilise un nouveau schéma de convection profonde (le schéma d'Emanuel (1991)) comparé à PYVAR-LMDz-TD-SACS. PYVAR-LMDz-NP-SACS se différencie de PYVAR-LMDz-SP-SACS en utilisant le modèle des thermiques et le schéma de Yamada (1983) pour paramétriser la diffusion verticale turbulente.

6.1.2 Mise à jour du modèle adjoint et du modèle tangent-linéaire

L'optimisation des sources et puits de méthane par modélisation inverse repose à la fois sur une modélisation directe des concentrations atmosphériques de méthane et sur la minimisation de la fonction coût mesurant l'écart de l'état optimisé à l'état *a priori* et l'état observé (Section 3.2.1.2). Dans le chapitre 3, il a également été vu que cette minimisation dépend notamment du calcul du gradient de la fonction coût grâce notamment au développement du modèle adjoint. En effet, le modèle adjoint permet un calcul efficace du gradient de la fonction coût.

Cependant, deux étapes sont généralement nécessaires pour bénéficier de la version

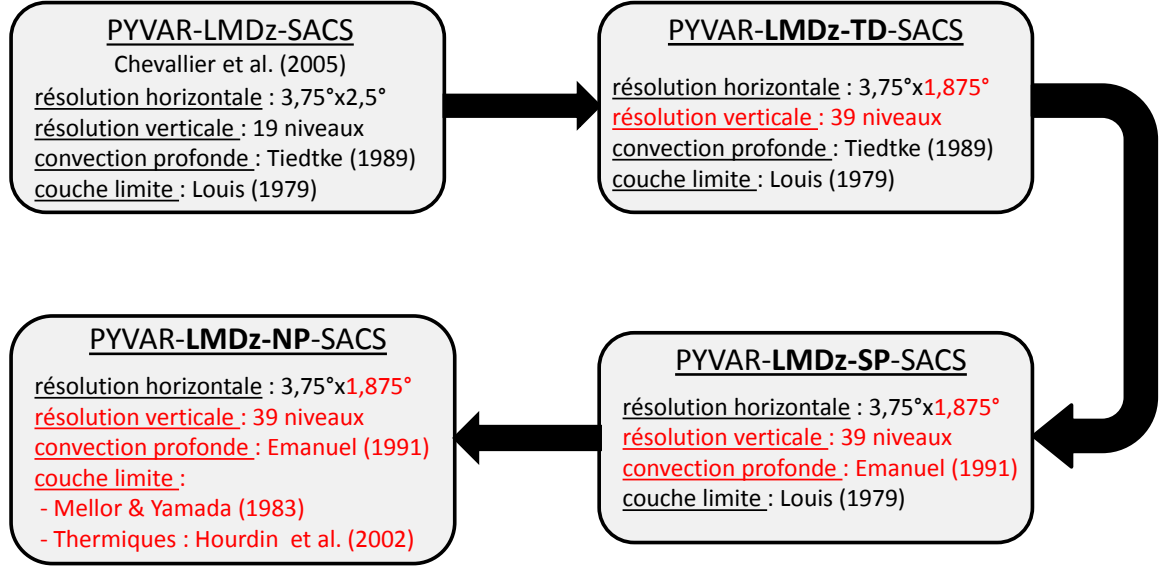


FIGURE 6.1: Description des caractéristiques du modèle de transport et de la résolution horizontale et verticale utilisées dans les différentes versions du système inverse (PYVAR-LMDz-TD-SACS, PYVAR-LMDz-SP-SACS et PYVAR-LMDz-NP-SACS) développées dans cette thèse à partir de la version PYVAR-LMDz-SACS décrite dans Chevallier et al. (2005).

adjointe du modèle : développer le modèle tangent-linéaire (TL) du modèle de chimie-transport complet, et développer ensuite l'adjoint de ce modèle TL. En pratique, ces deux étapes sont très contraignantes pour le développement et surtout la maintenance des codes numériques reposant sur des approches variationnelles, car toutes modifications apportées au modèle de chimie-transport doivent également être incorporées à la version « tangent-linéaire » et « adjointe » du modèle. J'ai réalisé ces différentes étapes au cours de ma thèse pour LMDz.

On présente, dans cette section, quelques tests et égalités à vérifier lors du développement de la version tangent-linéaire et adjointe du modèle. On prend l'exemple des paramétrisations de Emanuel (1991) et du modèle des thermiques (Hourdin et al., 2002).

Soient M l'opérateur représentant le modèle de chimie-transport, M' le modèle tangent-linéaire associé défini par $M' = \left[\frac{\partial M_i(x)}{\partial x_j} \right]$ où x est le vecteur d'état du système. On vérifie alors que le modèle du tangent-linéaire approxime bien le modèle complet en s'assurant que la formule de Taylor soit vérifiée, c'est-à-dire que :

$$\lim_{\lambda \rightarrow 0} \frac{M(x + \lambda \delta x) - M(x)}{\lambda \delta x M'(x)} = 1 \quad (6.1)$$

Ensuite, on vérifie que le modèle adjoint est bien défini en s'assurant que l'égalité 6.2 définissant un opérateur adjoint est satisfaite.

$$\forall x, \forall y \quad \langle M'.x, y \rangle = \langle x, M^*.y \rangle \quad (6.2)$$

L'opérateur \langle, \rangle est le produit scalaire. L'adjoint de l'opérateur linéaire M' est l'opérateur adjoint M^* .

Le tableau 6.1.2 présente les valeurs des termes de droite et de gauche de l'équation 6.2 calculés séparément pour les routines liées au modèle du thermique et à la paramétrisation de convection profonde de Emanuel (1991).

	$\langle M'.x, y \rangle$	$\langle x, M^*.y \rangle$
Thermiques	0.00018828298882725530405	0.000188282988827255249849
Convection Emanuel	0.00062638740087620599	0.00062638740087621188

TABLE 6.1: Comparaison des termes de l'égalité définissant l'adjoint de routines (équation 6.2). On montre ici les résultats pour le développement de l'adjoint de la routine du modèle des thermiques et de la convection profonde de Emanuel (1991).

Dans ce cas précis, les routines adjointes du modèle du thermique et de la paramétrisation physique de Emanuel (1991) vérifient bien l'égalité de la définition de l'opérateur adjoint puisque l'égalité 6.2 est respectée à la précision machine.

6.1.3 Performances du système

Les différentes améliorations apportées au modèle de transport (voir chapitre 5) s'accompagnent d'une dégradation des performances numériques du système puisqu'un nombre plus important de variables (paramétrisations supplémentaires) dont les dimensions sont plus grandes (augmentation de la résolution) ont été ajoutées.

La résolution verticale est maintenant plus de 2 fois plus fine, ce qui augmente considérablement la dimension des variables à calculer et stocker au cours des simulations, et celle des flux de masse à lire dans les fichiers précalculés. En effet, il a été vu que le schéma d'Emanuel (1991) utilisait une approche différente de celle du schéma de Tiedtke (1989) pour représenter la convection profonde. Il est alors nécessaire de connaître les flux de masse entre chaque couche du modèle dans le schéma d'Emanuel (1991), ce qui augmente considérablement le nombre de variables à lire et stocker dans le système. En plus de cela, l'implémentation du modèle des thermiques a nécessité une diminution du pas de temps pour éviter toute instabilité dans le modèle. Après plusieurs tests, il a été décidé de fixer le pas de temps dynamique et physique à respectivement 7 minutes 30 secondes et 15 minutes. Les autres versions du système utilisent un pas de temps dynamique de 15 minutes et un pas de temps physique de 30 minutes.

Pour ces différentes raisons, la version du système utilisant LMDz-NP comme modèle de transport est pénalisée par des temps de calcul très importants. Le tableau 6.2 résume les performances du système pour des simulations directes et inverses relativement à une année de simulation.

	Modélisation directe	Modélisation inverse
LMDz	40min	4 jours
LMDz-TD	1h15	10 jours
LMDz-SP	2h30	15 jours
LMDz-NP	3h30	20 jours

TABLE 6.2: Performances des différents versions de LMDz pour **une année** de simulation directe (colonne de gauche) et performances des différentes versions de PYVAR pour une optimisation des flux de méthane sur **une année** (colonne de droite).

Les chiffres des performances données dans le Tableau 6.2 reflètent une moyenne des performances puisque de nombreux paramètres peuvent perturber le temps de calcul d'une simulation. Par exemple, les noeuds de calcul disponibles pour les simulations sur les calculateurs du LSCE n'ont pas tous les mêmes performances et les temps de calcul peuvent fortement varier. De plus, il est apparu qu'une inversion contrainte par des données satellites converge plus rapidement qu'une inversion contrainte par des données de surface. En effet, l'émission de méthane à la surface produit une variabilité spatio-temporelle plus grande dans les contraintes de surface que dans les contraintes de la colonne totale (données satellites). Ainsi, il est plus facile pour le système de satisfaire les contraintes satellites ce qui lui permet de converger plus rapidement vers une solution optimale.

6.1.4 Les différentes inversions réalisées

Pour étudier les sources et puits de méthane au cours des années récentes, j'ai réalisé différentes inversions utilisant les trois différentes versions du système inverse (Figure 6.1) et différentes contraintes atmosphériques. En effet, trois jeux de données atmosphériques ont été testés : un jeu de stations de surface « background » (BG), un jeu de stations de surface « extended » (EXT) et un jeu de données satellites provenant de GOSAT (PR-LEI). Le réseau BG comprend une centaine de stations mesurant les concentrations « de fond » de méthane, puisque la majorité des stations de ce réseau sont localisées loin des principales sources de méthane. Le réseau EXT comprend 24 stations supplémentaires au réseau BG, qui, au contraire, sont localisées plus proches des sources de méthane. Ces stations ne sont généralement pas prises en compte dans les inversions globales des sources et puits de méthane parce que les modèles de chimie-transport globaux peinent souvent à reproduire les forts gradients dans les zones de fortes émissions (Geels et al., 2007). Une carte de la localisation des différentes stations composant le réseau BG et EXT est donnée dans la section 6.4. Le dernier jeu de données provient des données du satellite GOSAT et reconstruites selon la méthode par proxy décrite dans Parker et al. (2011). Puisque ce jeu de données utilise la méthode par « proxy » (en opposition à la méthode « Full-Physics ») et est issue de l'université de Leicester, on parlera par la suite du jeu de données « PR-LEI ». On détaille ce qu'est la méthode par proxy dans la section 6.4.

Finalement, 9 inversions ont été réalisées :

- trois inversions de surface contraintes par les mesures du réseau de surface « Background » (BG) utilisant les trois versions de LMDz (LMDz-TD, LMDz-SP et LMDz-NP) au sein de PYVAR
- trois inversions de surface contraintes par les mesures du réseau de surface « Extended » (EXT) utilisant les trois versions de LMDz (LMDz-TD, LMDz-SP et LMDz-NP) au sein de PYVAR
- trois inversions satellites contraintes par les données satellites de GOSAT reconstruites selon la méthode par « proxy » de Parker et al. (2011) pour les trois versions de LMDz (LMDz-TD, LMDz-SP et LMDz-NP) au sein de PYVAR

Ces inversions ont optimisé les sources et puits de méthane pour différentes périodes. Les inversions de surface estiment les sources et puits de méthane entre janvier 2006 et décembre 2012, tandis que les inversions basées sur des données satellites fournissent des estimations des émissions entre juin 2009 et juillet 2011. Afin d'éviter les effets de bord, seule l'année 2010 sera présentée pour les inversions satellites. L'année 2010 est donc la seule commune à toutes les inversions.

Il est important de signaler, avant d'aller plus loin, que les inversions satellites présentées dans cette section ont été obtenues en deux étapes. En effet, une comparaison des concentrations optimisées par des inversions utilisant directement les données de GOSAT avec des concentrations observées ont révélé un biais important dépendant légèrement de la latitude. Ce type de biais est un problème récurrent des inversions contraintes par des données satellites. Récemment, [Bergamaschi et al. \(2013\)](#) et [Houweling et al. \(2014\)](#) ont montré que les données de SCIAMACHY n'étaient pas utilisables sans corrections au préalable. [Monteil et al. \(2014\)](#) ont également trouvé des incohérences entre des inversions de surface et des inversions satellites basées sur des données GOSAT. Ces différentes études concluent que ces biais sont probablement liés à des erreurs de modélisation du transport atmosphérique et/ou à des biais dans les données elles-mêmes. Ainsi, dans le but de s'affranchir au maximum de ces biais, on réalise les inversions satellites en deux étapes. La première étape consiste à réaliser une inversion en utilisant les données de GOSAT sans appliquer de correction. La deuxième étape consiste à réaliser une seconde inversion en enlevant aux données GOSAT le biais obtenu lors de la comparaison des concentrations optimisées avec la première inversion qui utilise des mesures de surface. Ainsi, selon cette méthode, on utilise les mesures de surface, dont les erreurs instrumentales sont faibles, pour caler le bilan total des émissions et on utilise la densité spatiale des données satellites pour ajuster la distribution spatiale des émissions. Je présente les principaux résultats expliquant les incohérences entre les inversions satellites et les inversions de surface dans la section [6.3.2](#), le détail pouvant être trouvé dans la publication présentée dans la Section [6.4](#).

Le « set-up » des inversions s'appuie sur les informations *a priori* et les matrices d'erreurs décrites et définies dans la section [3.4](#). Des informations complémentaires sont également détaillées dans la publication présentée dans la Section [6.4](#).

Finalement, les développements détaillés dans cette section nous permettent de présenter dans les paragraphes suivants une estimation des sources et puits de méthane pour les années récentes avec différentes versions du système inverse, PYVAR-LMDz-SACS. On s'intéresse tout d'abord à l'estimation des sources et puits de méthane pour l'année commune (année 2010) à nos diverses inversions (section [6.2](#)).

6.2 Estimation des sources et puits de méthane pour 2010

Seule l'année 2010 est commune aux 9 différentes inversions, c'est pourquoi on présente ici les sources et puits optimisés pour 2010 à l'échelle planétaire et régionale. L'ambition de cette section n'est pas de comparer les 9 différentes inversions entre elles, ce qui sera fait dans la section [6.4](#), mais de dresser un bilan des émissions de méthane pour l'année 2010 en distinguant les zones géographiques contribuant le plus aux émissions totales de méthane. Les chiffres donnés dans cette section représentent la moyenne des émissions des 9 inversions. Cependant, la dispersion des différentes inversions est également indiquée dans les différents graphiques et tableaux. On étudie également les différences entre l'estimation *a priori* et l'estimation *a posteriori* pour détecter d'éventuelles anomalies dans l'inventaire *a priori*.

La figure [6.2](#) présente les estimations des sources et puits de méthane pour 2010 dans 12 différentes régions (histogrammes bleus relativement à l'axe des ordonnées de gauche) et pour l'ensemble du globe (histogramme rouge relativement à l'axe des

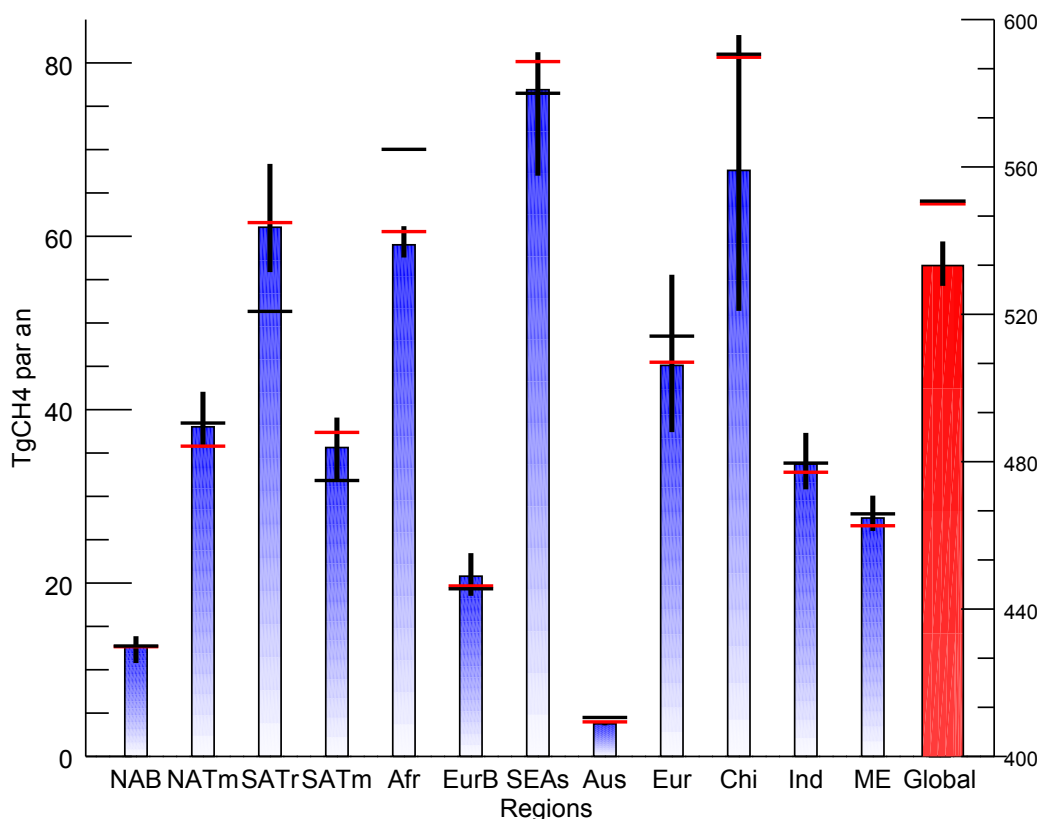


FIGURE 6.2: Estimation des flux de méthane pour l'année 2010 à l'échelle globale (histogramme rouge - axe de droite) et pour différentes régions (histogrammes bleus - axe de gauche). La barre rouge représente la valeur de l'estimation *a priori* pour les différentes zones géographiques considérées. Les barres noires donnent les estimations obtenues avec l'ancienne version de PYVAR (résolution de 96x72x19 et physique de LMDz-TD) et un inventaire *a priori* légèrement différent (voir la description de cet inventaire dans [Cressot et al. \(2014\)](#)).

ordonnées de droite). Les 12 différentes régions sont : Amérique du Nord boréale (NAB), Amérique du Nord tempérée (NATm), Amérique du Sud tropicale (SATr), Amérique du Sud tempérée (SATm), Afrique (Afr), Eurasie boréale (EurB), Asie du Sud-Est (SEAs), Australie (Aus), Europe (Eur), Chine (Chi), Inde (Ind) et Moyen-Orient (ME). La figure 6.3 donne une représentation géographique de ces 12 différentes régions. Les valeurs des émissions *a priori* des différentes régions sont notées par des traits rouges, tandis que les estimations obtenues avec la version originelle de PYVAR-LMDz-SACS ([Chevallier et al., 2005](#)) sont indiquées par des traits noirs.

A l'échelle globale, l'inversion des concentrations atmosphériques de méthane en 2010 induit une réduction des émissions en comparaison avec l'estimation *a priori* des émissions planétaires. Les inversions estiment des émissions globales comprises entre 527.7 et 539.8 TgCH₄.an⁻¹ et égales en moyenne à 533.2 TgCH₄.an⁻¹, contre 550 TgCH₄.an⁻¹ pour l'estimation *a priori*. La principale zone géographique où l'estimation *a priori* est en désaccord avec la moyenne des inversions menées ici est la Chine. En effet, l'estimation moyenne des émissions en Chine est de 67.6 TgCH₄.an⁻¹ pour 2010 alors que l'estimation *a priori* s'élève à 80.7 TgCH₄.an⁻¹. L'estimation *a priori* utilisée ici vient de l'inventaire EDGAR version 4.2FT2010 ([Olivier and Janssens-Maenhout](#) ,

Regions

6. ESTIMATION DES SOURCES ET PUIITS DE MÉTHANE ENTRE 2006 ET 2012 : BILAN ET INFLUENCE DU TRANSPORT ATMOSPHÉRIQUE

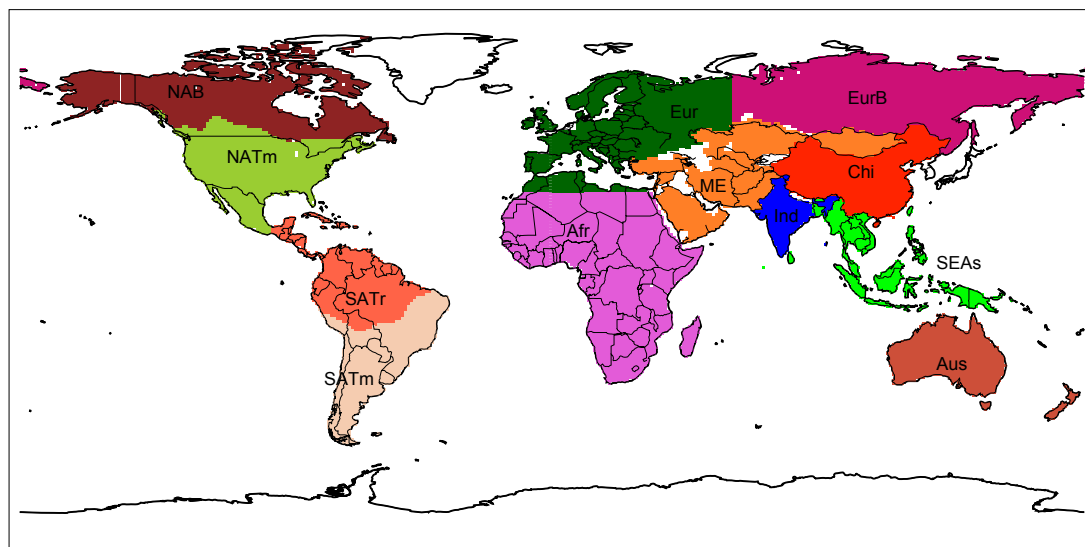


FIGURE 6.3: Carte des 12 différentes régions utilisées pour l'étude des estimations des émissions de méthane par modélisation inverse. NAB : Amérique du Nord boréale ; NATm : Amérique du Nord tempérée ; SATr : Amérique du Sud tropicale ; SATm : Amérique du Sud tempérée ; Afr : Afrique ; EurB : Eurasie boréale ; SEAs : Asie du Sud-Est ; Aus : Australie ; Eur : Europe ; Chi : Chine ; Ind : Inde et ME : Moyen-Orient.

2012), comme il a été décrit dans la section 3.4.1, qui a déjà été pointé comme surestimant les émissions de la Chine sur la période 2000 à 2010 (Bergamaschi et al., 2013). Les principales contributions aux émissions anthropiques en Chine sont les émissions liées à l'exploitation du charbon et à l'agriculture (culture du riz et fermentation entérique). L'inventaire de l'EPA (Environmental Protection Agency) a récemment publié un rapport (EPA, 2012) faisant état d'émissions anthropiques plus basses que celles estimées par EDGAR. En effet, l'EPA a estimé les émissions anthropiques pour l'année 2010 en Chine à 43.8 TgCH₄ contre 78.2 TgCH₄ dans l'inventaire d'EDGAR. La diminution des émissions inventoriées par l'EPA est principalement associée à l'estimation plus faible des émissions de méthane par l'exploitation du charbon.

On remarque que la dispersion entre les différentes inversions en Chine en 2010 est très grande : l'estimation maximale atteint 83.2 TgCH₄ tandis que l'estimation minimale atteint 51.4 TgCH₄. Cependant, une seule configuration précise de l'inversion (configuration PYVAR-LMDz-NP-SACS contrainte par le réseau de surface EXT) estime des émissions supérieures à l'inventaire EDGAR version 4.2FT2010 en Chine. On reviendra sur ce résultat dans la section 6.3 lorsqu'on présente l'impact des différentes paramétrisations physiques sur l'estimation des émissions de méthane.

Les estimations des émissions en Europe, Asie du Sud-Est et Amérique du Sud tropicale présentent des estimations moyennes proches de l'estimation *a priori*. Mais la dispersion entre les inversions est grande. Ainsi, les émissions de méthane sont respectivement comprises dans une fourchette de 18.2 (40% des émissions totales de la région), 14.2 (18%) et 12.5 TgCH₄ (20%) en 2010 pour l'Europe, l'Asie du Sud-Est et l'Amérique du Sud tropicale. On peut donc en conclure que les différentes configurations du transport sont particulièrement sensibles dans ces régions là.

Les traits noirs sur la figure 6.2 représentent les estimations obtenues dans la version originelle de PYVAR décrite dans Chevallier et al. (2005). Je rappelle que cette version

diffère principalement des inversions présentées dans cette section par la version du modèle LMDz qui est utilisée. En effet, dans cette version originelle, la résolution spatiale est de $3.75^\circ \times 2.5^\circ$ (96 points en longitude et 72 points en latitude) et 19 niveaux verticaux. Les paramétrisations physiques sont identiques à celles constituant la version LMDz-TD. L'estimation des émissions planétaires utilisant cette ancienne version de PYVAR ($550.7 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-1}$) est supérieure à la moyenne des estimations des émissions obtenues avec les nouvelles versions de PYVAR ($533.2 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-1}$). Le défaut du modèle de transport, qui représente les échanges inter-hémisphériques trop rapidement (Patra et al., 2011; Locatelli et al., 2013), donne une partie de l'explication sur l'écart entre les émissions globales de ces différentes versions. En effet, il faut rappeler qu'un temps d'échange inter-hémisphérique trop rapide simulé par le modèle de transport, impose en réponse des émissions plus fortes dans l'hémisphère nord. On peut signaler également que l'information *a priori* utilisée dans cette inversion n'est pas exactement la même que celle utilisée dans les 9 inversions décrites précédemment (voir la description de l'information *a priori* dans Cressot et al. (2014)). Par exemple, l'estimation *a priori* est de $74.7 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ en Afrique (nettement supérieure au $60.5 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ de l'estimation *a priori* utilisée dans les autres inversions). L'optimisation des flux de méthane, qui est peu contrainte dans cette zone géographique, reste proche de cette information *a priori* ($70.0 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-1}$). Ainsi, on montre ici que la qualité de l'inventaire *a priori* est primordiale pour ne pas biaiser l'estimation des flux de méthane dans des régions peu contraintes par les observations atmosphériques de surface.

	Global	ANB	ANT	ASTr	ASTm	Afr	EurB	SEAs	Aus	Eur	Chi	Ind	ME
Moyenne	532.2	12.7	38.0	61.1	35.6	59.0	20.8	76.9	3.8	45.1	67.6	33.7	27.5
Minimum	527.7	10.8	35.6	55.9	32.0	57.6	18.5	67.0	3.6	37.4	51.4	30.8	26.0
Maximum	539.8	13.9	42.1	68.4	39.1	61.2	23.5	81.2	3.9	55.6	83.2	37.3	30.1
Dispersion (Max - Min)	12.1	3.1	6.5	12.5	7.1	3.6	5.0	14.2	0.3	18.2	31.8	6.5	4.1
Prior	550.0	12.7	35.8	61.6	37.4	60.5	19.7	80.2	4.0	45.5	80.7	32.8	26.6
Ecart au prior	-16.8	0.0	+2.2	-0.5	-1.8	-1.5	+1.1	-3.3	-0.2	-0.4	-13.1	+0.9	+0.9
PYVAR originel	550.7	12.7	38.4	51.3	31.8	70.0	19.3	76.5	4.5	48.5	81.0	33.8	28.0
Kirschke moyenne	524.7	9.6	51.3	45.3	41.3	73.9	20.6	49.6	6.0	49.6	51.6	31.9	-
Kirschke minimum	511.6	4.8	43.4	27.6	35.0	52.5	10.6	27.7	1.5	34.7	43.0	22.5	-
Kirschke maximum	549.4	19.2	63.0	63.7	59.0	97.0	37.4	82.6	15.3	65.0	61.0	46.5	-
Ecart à Kirschke	+7.6	+3.1	-13.3	+15.8	-5.7	-14.9	+0.2	+27.3	-2.2	-4.5	+16.0	+1.8	-

TABLE 6.3: Bilan des inversions de méthane pour 2010 ($\text{TgCH}_4.\text{an}^{-1}$) à l'échelle planétaire et pour les douze différentes régions présentées sur la carte de la figure 6.3. Les résultats sont comparés aux résultats de Kirschke et al. (2013).

Le tableau 6.3 donne les valeurs numériques des estimations d'émissions de méthane globales et régionales. Les différentes colonnes représentent successivement la valeur moyenne des estimations (Moyenne), le minimum (Minimum), le maximum (Maximum) des estimations pour les 9 inversions, l'estimation *a priori* (Prior) et l'estimation obtenue dans le cas de l'ancienne version de PYVAR (PYVAR originel de (Chevallier et al., 2005)). La dispersion (Dispersion) entre les inversions et l'écart à l'estimation *a priori* (Ecart au prior) sont également donnés et exprimés en $\text{TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ dans ce tableau. On retrouve les résultats évoqués précédemment : écart important à l'*a priori* en Chine, grandes dispersions entre les inversions en Amérique du Sud tropicale, Asie du Sud-Est et Europe. En complément de cela, on note que l'Asie du

Sud-Est ($76.9 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-1}$) et l'Amérique du Sud tropicale ($61.1 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-1}$) sont les deux régions contribuant le plus aux émissions totales planétaires selon les inversions menées dans ce travail.

On reporte également dans le tableau les valeurs des estimations dans les différentes régions provenant de l'étude de [Kirschke et al. \(2013\)](#) qui propose un bilan des émissions estimées par les différents systèmes inverses existants pour les 30 dernières années. Les valeurs reportées dans le tableau sont seulement relatives à la moyenne des émissions sur la période 2008-2010. A l'échelle globale, la moyenne des études prises en compte dans [Kirschke et al. \(2013\)](#) estime les émissions à $524.7 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-1}$, ce qui est 7.6 TgCH_4 plus faible que la moyenne des inversions présentées ici. Cependant, les résultats de notre étude restent dans la fourchette des résultats d'inversions de [Kirschke et al. \(2013\)](#). Aux échelles régionales, les écarts des émissions moyennes peuvent être importants. C'est notamment le cas pour les régions tropicales. La moyenne de nos 9 inversions indique des estimations des émissions supérieures de $15.8 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ et $27.3 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ respectivement en Amérique du Sud tropicale et en Asie du Sud-Est. Comme je l'ai évoqué précédemment, les chiffres issus de l'étude de [Kirschke et al. \(2013\)](#) sont relatifs à la moyenne des émissions sur la période 2008-2010. Ainsi, les écarts mentionnés précédemment peuvent s'expliquer par les conditions climatiques exceptionnelles dans les tropiques au cours de l'année 2010, qui ont pu accroître les émissions de méthane dans ces régions. On discutera plus en détails du caractère anormal des émissions de méthane de l'année 2010 comparée aux autres années de la première décennie du 21^e dans la section 6.5. On note aussi que la moyenne trouvée ici sort de la fourchette donnée par [Kirschke et al. \(2013\)](#) pour deux régions. C'est le cas pour la Chine avec $67.6 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ pour une fourchette allant de 43.0 à $61.0 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-1}$, et l'Amérique du Nord tempérée avec $38.0 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ pour une fourchette allant de 43.4 à $63.0 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-1}$. En Chine, les émissions étant en fortes croissances, on peut comprendre qu'il y ait un écart entre les émissions portant sur la période 2008-2010 issue de [Kirschke et al. \(2013\)](#) et celles estimées ici pour la seule année 2010. A noter aussi que les fourchettes trouvées ici et celles de [Kirschke et al. \(2013\)](#) ne sont jamais disjointes.

Finalement, l'estimation moyenne des émissions de méthane par modélisation inverse en 2010 est assez cohérente avec l'estimation *a priori*, excepté en Chine où une surestimation des émissions anthropiques de méthane dans l'inventaire EDGAR version 4.2FT2010 semble être une explication plausible de ce désaccord. Cependant, on remarque une dispersion importante des résultats des inversions dans certaines régions. Les 9 différentes inversions présentées ici se distinguent à la fois par les contraintes atmosphériques qu'elles utilisent (différents réseaux de surface et jeu de données satellites) et par la version du modèle LMDz utilisée pour relier l'espace des flux à l'espace des concentrations atmosphériques. Ainsi, on peut alors se demander :

- Quel est l'impact des différentes paramétrisations physiques implémentées dans LMDz sur les inversions ?
- Quelles zones géographiques sont les plus impactées ?
- Est-ce que l'utilisation de différents types de données atmosphériques modifie l'impact des paramétrisations sur les inversions ?

On tente de répondre à ces questions dans la section suivante. De plus, les résultats exposés dans cette section sont relatifs à une seule année : 2010. L'étude de la variabilité interannuelle entre 2006 et 2012 des émissions de méthane est proposée dans la section 6.5 et permettra de répondre à d'autres questions :

- Quelle est la variabilité interannuelle trouvée par 9 inversions menées dans ce travail ?
- A quelles régions et quels processus ces 9 inversions attribuent-elles cette varia-

bilité ?

- Est-ce que l'année 2010 est représentative des autres années de la dernière décennie au regard des émissions de méthane ?

6.3 Sensibilité des inversions de méthane aux paramétrisations physiques

Cette section se base sur un article à soumettre donné en section 6.4 et dont les principaux résultats sont présentés au préalable.

6.3.1 Présentation

Dans cette section, on revient plus longuement sur la sensibilité des estimations des émissions de méthane par modélisation inverse aux paramétrisations physiques du modèle de chimie-transport. Les trois versions du système inverse, détaillées précédemment et différenciées par la version du modèle de transport (LMDz-TD, LMDz-SP et LMDz-NP) utilisée, sont comparées. Les trois jeux de données atmosphériques (voir la section 6.1.4 pour le détail des jeux de données) décrits précédemment sont utilisés pour contraindre les différentes inversions.

Ici, on compare successivement les émissions totales de méthane à l'échelle globale et aux échelles régionales trouvées pour 9 inversions (3 versions du modèle et 3 jeux de données) dans le but de quantifier l'impact des paramétrisations physiques sur les estimations des émissions de méthane. On analysera également la cohérence des résultats obtenus entre les inversions basées sur des contraintes atmosphériques à la surface (inversions BG et EXT) et sur la colonne atmosphérique (inversions PR-LEI) afin de voir comment il est possible d'utiliser au mieux les informations complémentaires apportées par ces deux types de données.

6.3.2 Principaux résultats

6.3.2.1 Impact des paramétrisations physiques sur les estimations globales

A l'échelle planétaire, on trouve que la dispersion due à l'utilisation de différentes paramétrisations physiques atteint 2.7, 7.5 et 2.1 $\text{TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ dans les inversions contraintes respectivement par les jeux de données BG, EXT et PR-LEI. Ces chiffres représentent 0.5%, 1.4% et 0.4% des émissions de méthane à l'échelle planétaire, et 10.0%, 27.8% et 7.8% des différences dues au transport atmosphérique notées avec l'utilisation d'un ensemble de 9 modèles différents (Locatelli et al., 2013). Le fait que les contraintes de surface contiennent un signal plus fort des émissions que les contraintes sur la colonne totale, permet de comprendre la dispersion plus grande des émissions trouvées dans les inversions basées sur des contraintes de surface.

On quantifie également le fait que les inversions basées sur une version du modèle de chimie-transport utilisant le schéma de convection profonde de Emanuel (1991) estiment un gradient inter-hémisphérique plus faible pour les émissions de méthane. Ce résultat confirme les hypothèses formulées dans Locatelli et al. (2014) et illustre l'une des améliorations obtenues avec le nouveau système. En effet, la représentation des échanges inter-hémisphériques est un problème récurrent des anciennes versions de LMDz. Il a été mis en évidence par Patra et al. (2011) dans la version originelle de Chevallier et al. (2005) (dont la version de LMDz utilisée est basée sur le schéma de Tiedtke (1989)). Ici, sans complètement régler le problème, on améliore sensiblement

le biais du gradient des émissions entre les deux hémisphères que ce problème cause.

6.3.2.2 Impact des paramétrisations physiques sur les estimations régionales

Aux échelles régionales, l'impact des paramétrisations physiques est compris entre 1% et 11%, 3% et 18%, et entre 2% et 17% pour les inversions contraintes respectivement par BG, EXT et PR-LEI. L'implémentation du modèle des thermiques dans le système inverse impacte fortement les estimations aux échelles régionales, notamment dans les régions où de fortes quantités de méthane sont émises. C'est le cas principalement dans les régions tropicales pour les inversions contraintes par PR-LEI où l'on observe une distribution spatio-temporelle très différente entre le système inverse utilisant LMDz-NP et les autres systèmes n'utilisant pas le modèle du thermique pour représenter le mélange dans la couche limite.

6.3.2.3 Cohérence entre les inversions de surface et les inversions satellites

La cohérence entre les inversions basées sur des données de surface et les inversions basées sur des données satellites est également étudiée. En effet, c'est une question importante à traiter pour envisager de mélanger ces jeux de données, et ce d'autant que le nombre de données satellites et la diversité des observations atmosphériques disponibles ont augmenté depuis 10 ans. Ici, nous montrons que les inversions de surface et les inversions satellites ne sont pas cohérentes entre elles. En effet, un biais important de 40 ppb en moyenne et légèrement dépendant de la latitude est mis en évidence en surface pour les inversions satellites : les concentrations modélisées par LMDz en utilisant le flux optimisé par les inversions satellites surestiment les concentrations observées à la surface (et non assimilées dans l'inversion). En outre, on montre que ce biais est indépendant des paramétrisations physiques testées ici. Au contraire, on montre qu'une partie de ce biais peut être expliquée par une mauvaise représentation des échanges entre la troposphère et la stratosphère, qui dans le cas de LMDz ont été fortement améliorés grâce au gain de la résolution verticale (passage de 19 à 39 niveaux verticaux). L'autre partie du biais est très probablement liée aux données satellites elles-mêmes.

6.3.2.4 Discussions et conclusions

La quantification de l'impact des paramétrisations physiques sur les inversions de méthane présentée dans cette étude permet de distinguer la contribution due aux paramétrisations dans l'ensemble des erreurs de modélisation qui ont été étudiées dans [Locatelli et al. \(2013\)](#). A l'échelle globale, l'impact des erreurs liées à l'utilisation de différents modèles de transport s'élève à 27 TgCH₄.an⁻¹ (soit 5% des émissions planétaires) d'après [Locatelli et al. \(2013\)](#). Ici, la moyenne des 3 paquets d'inversions (relativement aux 3 types de contraintes) donne une incertitude sur les estimations des flux de méthane liée aux paramétrisations physiques de 0.8%. Ainsi, une variation substantielle des paramétrisations physiques d'un même modèle explique seulement très partiellement (16%) l'ensemble des erreurs liées à la modélisation du transport atmosphérique. Le reste doit alors être attribué aux incertitudes existantes dans les forçages météorologiques et aux autres éléments des configurations du modèle (résolution, choix et couplages entre schémas numériques, etc). A l'échelle régionale, par contre, la comparaison de nos résultats avec l'étude de [Locatelli et al. \(2013\)](#) montre que les paramétrisations physiques testées ici expliquent en moyenne 24%

(mais jusqu'à plus de 50% dans certaines régions) des erreurs liées à la modélisation du transport atmosphérique.

Les incertitudes présentes dans les estimations des émissions de méthane dues aux imperfections des paramétrisations physiques constituent donc une limitation importante dans l'interprétation des anomalies de flux de méthane à l'échelle régionale.

6.4 Publication draft : « Sensitivity of the recent methane budget to LMDz sub-grid scale physical parameterizations »

Abstract

With the densification of surface observing networks and the development of remote sensing of greenhouse gases from space, the quality of the representation of atmospheric transport becomes more and more critical when converting atmospheric into surface emissions using atmospheric inversions.

Here we propose a study quantifying the impact of sub-grid scale physical parameterization errors on the global methane budget inferred by inverse modelling using the same inversion set-up but different physical parameterizations within one transport model. Two different schemes for vertical diffusion, two others for deep convection, and one additional for thermals are tested. Different atmospheric methane datasets are used as constraints (surface or satellite data).

At the global scale, the uncertainty on global methane emissions related to sub-grid scale parameterizations is, on average, of 4.1 TgCH₄ per year. Inversions using satellite total-column retrieved by GOSAT satellite are less impacted, at the global scale, by errors in physical parameterizations. Focusing on large-scale atmospheric transport, we show that inversions using the deep convection of Emanuel derive smaller interhemispheric gradient in methane emissions. At regional scale, the use of different sub-grid scale parameterizations induces uncertainties ranging from 1.2% (2.7%) in Africa to 9.4% (14.2%) in Eurasia Boreal when using only surface measurements from the background (extended) surface network. When using only satellite data, it is shown that previous small biases found in GOSAT-CH₄ data are actually linked to a poor representation of the stratosphere-troposphere gradient in the model. Improving the stratosphere-troposphere gradient reveals a larger bias in GOSAT-CH₄ satellite data, which largely amplifies inconsistencies between surface and satellite inversions. Finally, the results of this work provide the level of confidence one can have for recent methane inversions relatively to physical parameterizations included in chemical transport models.

6.4.1 Introduction

Inverse modelling techniques are a way to derive sources and sinks of methane using atmospheric measurements as constraints. However, large uncertainties affect CH₄ budget. Kirschke et al. (2013) estimate methane sources ranged from 526 to 569 TgCH₄.year⁻¹ during 2000-2009 using inverse modelling. Two major causes of uncertainties of methane inversions are the limited number and the uneven coverage of atmospheric observations and the errors made in the representation of atmospheric transport. However, the increasing number of satellite data retrieving greenhouse gas

atmospheric columns and the densification of surface networks in space and time gradually supplements the issue related to atmospheric observations. Consequently, more pressure is put on the quality of the representation of atmospheric transport in current inversions. Indeed, inverse modelling requires a model to rely methane emissions to methane mixing ratios in the atmosphere. Such a model is generally a chemical transport model (CTM) or a chemistry-climate model (CCM). Then, an atmospheric inversion for greenhouse gases derives the optimal methane sources and sinks scenario which satisfactory fits both atmospheric observations, given a CTM or CCM, a prior scenario of sources and sinks, and errors for observations, model and emission scenarios (Enting, 2002). The optimal character of such approaches assumes that these errors are properly estimated in magnitude and are unbiased. Indeed, inversions are largely sensitive to any sorts of biases impacting simulated or measured methane mixing ratio. These biases may be related to the CTM and/or the observation data sets, and they directly perturb the optimization of methane fluxes by inverse modelling. Biases in measurements, especially in satellite retrievals, are very likely (Frankenberg et al., 2005; Monteil et al., 2013; Houweling et al., 2014; Bergamaschi et al., 2013). The first release of SCHIAMACHY data in 2005 were largely biased producing very large tropical emissions (Frankenberg et al., 2005). A major revision has been done to the SCHIAMACHY satellite retrievals (Frankenberg et al., 2008), but inversions using SCHIAMACHY retrievals still need to carry on large bias corrections up to several tens of ppb (Bergamaschi et al., 2009; Cressot et al., 2014). Systematic errors in CTMs have also significant impacts on inverse estimates. In Locatelli et al. (2013), it is shown that transport model errors are responsible for an uncertainty of $27 \text{ TgCH}_4 \cdot \text{year}^{-1}$ on estimations of methane fluxes by inverse modelling at the global scale. Moreover, Locatelli et al. (2014) show that stratosphere/troposphere exchanges are systematically too fast in version of LMDz using low vertical resolution, which could largely impact estimation of gas fluxes, like N_2O , whose stratospheric mixing ratios influence tropospheric mixing ratios. Besides, following Patra et al. (2011), Locatelli et al. (2013) showed that a bad representation of the interhemispheric exchange in an ensemble of state-of-the-art CTMS can explain a lot of the discrepancies in the global methane fluxes derived by inverse modelling using these different CTMs at hemispheric scale.

Based on an ensemble of transport models, Locatelli et al. (2013) have quantified the impact of transport model errors on inversions, but they do not separate the contributions of each transport process. Indeed, inconsistencies in inversions may have multiple origins : vertical/horizontal resolution, meteorological fields used to nudge horizontal winds, sub-grid scale physical parameterizations, advection schemes, numerical methods, etc. Among the different transport processes, the quality of vertical mixing appears to be a key point to improve (Stephens et al., 2007; Geels et al., 2007; Patra et al., 2011). On the vertical, in global models, transport processes such as planetary boundary layer mixing or deep convection have to be parametrized, being on sub-scales of the model grid. Here, we propose to assess the impact of different parametrisations of sub-grid-scale transport on the inverted methane emissions for the year 2010. To do so, we run an ensemble of inversions using different versions of the LMDz model. These versions are only distinguished by the physical parameterizations they use : two parameterisations of vertical diffusion (Louis, 1979; Yamada, 1983), one parameterisation of the thermals (Hourdin et al., 2002) and two deep convection schemes (Tiedtke, 1989; Emanuel, 1991) are tested in three different versions of LMDz. As the impact of model parameterizations can be different when assimilating surface data or satellite column data, we also evaluate the impact of physical parameterization errors on inversions constrained either by surface observations or by GOSAT satellite data.

In this sense, this paper is not to be taken as an assessment of the global and regional methane budget for 2010 but more as a study on the sensitivity of this budget to

atmospheric transport errors. In the following, section 6.4.2 presents the setup of the ensemble of inversions performed. The consistency between surface-based and satellite-based inversions is then presented (section 6.4.3). The impacts are then analysed for emissions at the global scale (section 6.4.4) and at regional scales (section 6.4.5).

6.4.2 Set-up of variational methane inversions

6.4.2.1 PYVAR-LMDz-SACS

The PYVAR-LMDz-SACS system (Chevallier et al., 2005; Pison et al., 2009) relies on Bayes' theorem and is based on a variational data assimilation system to derive the optimal state of CH₄ fluxes given CH₄ observations and a background estimate of CH₄ fluxes. Variational data assimilation involves minimizing a cost function J , which is a measure of both the discrepancies between measurements and simulated mixing ratios and between the background fluxes and the estimated fluxes, weighted by their respective uncertainties, expressed in the covariance matrices \mathbf{R} (measurement) and \mathbf{B} (prior fluxes), defined as follows :

$$J(\mathbf{x}) = (\mathbf{y} - \mathbf{H}\mathbf{x})^T \mathbf{R}^{-1} (\mathbf{y} - \mathbf{H}\mathbf{x}) + (\mathbf{x} - \mathbf{x}^b)^T \mathbf{B}^{-1} (\mathbf{x} - \mathbf{x}^b) \quad (6.3)$$

\mathbf{x} is the state vector that contains the variables to be optimized during the inversion process. In PYVAR, methane fluxes are optimized for eight day periods in all the grid cells of the model. The vector \mathbf{x}^b represents the prior state of \mathbf{x} . Likewise, the vector \mathbf{y} contains the observations of CH₄. \mathbf{B} is the prior error covariance matrix. Its diagonal is filled in with the variances set to 70% of the square of the maximum of emissions over the eight neighbouring cells during each month. Off diagonal terms of \mathbf{B} (covariances) are based on correlation e-folding lengths (500 km over land and 1000 km over sea). No temporal correlations are considered in the \mathbf{B} matrix. Prior information including in the \mathbf{B} matrix have several origins :

- CH₄ anthropogenic emissions are based on EDGAR v4.2-FT2010 estimates (Olivier and Janssens-Maenhout, 2012)
- CH₄ biomass burning emissions are based on GFED3 inventory (Randerson et al., 2013)
- wetland emissions are based on the work of Kaplan in Bergamaschi et al. (2007)

The \mathbf{R} matrix accounts for all errors contributing the mismatches between measurements and simulated CH₄ mixing ratios. \mathbf{R} is usually considered as a diagonal matrix because considering covariance dramatically slows down the optimisation and knowledge about these covariances is too poor. The main contributions to variances are instrumental and model errors. In surface-based inversions, instrumental errors are considered equal to 3 ppb (Bergamaschi et al., 2010) and model errors are computed at each site as the residual standard deviation (RSD) of the measurements on a smooth curve fitting them. The RSD at each site is a proxy of the transport model errors. Previous studies using PYVAR-LMDz-SACS have used this approach (Bousquet et al., 2006; Yver et al., 2011; Locatelli et al., 2013). In satellite-based inversions, GOSAT retrievals random errors are estimated to be about 0.6% of satellite measurements (Cressot et al., 2014) and a transport model error of 1% of the observation values is added according to the results of Cressot et al. (2014) on tuning of error statistics. \mathbf{H} is the observation operator that projects the state vector \mathbf{x} into the observation space. \mathbf{H} is represented here by the offline version of LMDz complemented by a simplified chemistry module (SACS) to represent the main reactions of the oxidation chain of methane (Pison et al., 2009). The iterative minimizing process implies calculating

the gradient of the cost function, which is implemented using the adjoint technique, iteratively solved with the M1QN3 algorithm developed by [Gilbert and Lemaréchal \(1989\)](#) until the gradient norm gets reduced by more than 99%. More precisions on the LMDz-PYVAR-SACS system can be found in ([Chevallier et al., 2005, 2007](#); [Pison et al., 2009](#)).

6.4.2.2 Three different versions of LMDz : LMDz-TD, LMDz-SP and LMDz-NP

LMDz is the general circulation model (GCM) of the IPSL earth system model ([Hourdin et al., 2006, 2012b](#)). Here we use an offline version of LMDz implemented in the variational inverse system initially developed by [Chevallier et al. \(2005\)](#) and gradually improved by different contributions ([Pison et al., 2009](#); [Yver et al., 2011](#); [Fortems-Cheiney et al., 2011](#)). Air mass fluxes are computed and stored using the full GCM and then only the mass balance equation is solved within the variational system, based on the stored air mass fields. In the following, LMDz refers to the offline version of the GCM embedded in the variational system.

In this study, we use three different versions of LMDz (LMDz-TD, LMDz-SP and LMDz-NP) distinguished by physical parametrizations included to simulate atmospheric transport. LMDz-TD uses the physical parameterizations used in the original version of the inverse system of [Chevallier et al. \(2005\)](#) : vertical diffusion is parameterized by a local approach from [Louis \(1979\)](#) and deep convection processes are parameterized by [Tiedtke \(1989\)](#). LMDz-SP uses also a local approach to parameterize vertical diffusion and [Emanuel \(1991\)](#) scheme parameterizes deep convection. LMDz-NP uses a combination of [Yamada \(1983\)](#) scheme and the thermal plume model of [Hourdin et al. \(2002\)](#) to simulate atmospheric mixing in the boundary layer. Atmospheric transport by deep convection is parameterized by [Emanuel \(1991\)](#).

More details on the characteristics of these three versions of LMDz concerning the modelling of atmospheric transport can be found in [Locatelli et al. \(2014\)](#). Briefly, LMDz-TD is characterized by low variability in the PBL due to an over-estimation of PBL mixing. It leads to an under-estimation of the strong gradient observed near sources. On the opposite, LMDz-NP simulates quite well the diurnal cycle of the PBL. The modelling of large-scale atmospheric transport has been also improved with the using of [Emanuel \(1991\)](#) deep convection scheme. The interhemispheric (IH) exchange, which is known to be too fast when using LMDz-TD version, is shifted closer to the indirectly measured inter-hemispheric exchange when using [Emanuel \(1991\)](#) scheme, as it is done in LMDz-SP and LMDz-NP.

6.4.2.3 Three different observation data sets

Different observation data sets exist to constrain methane atmospheric inversions. Surface observations have been assimilated for years, mostly for background or coastal locations, with flasks sampling ([Hein et al., 1997](#); [Houweling et al., 1999](#); [Bousquet et al., 2006](#)). However more and more continuous and/or continental sites have appeared in the recent years, which largely increase the space and time density compared to surface observations. Since 2003, satellite data for total methane weighted-columns also exist ([Frankenberg et al., 2005](#)), largely increasing spatio-temporal coverage of observations but at the cost of lower precision and accuracy of individual measurement. In this study, two surface observation datasets and one GOSAT satellite dataset are used to constrain different inversions.

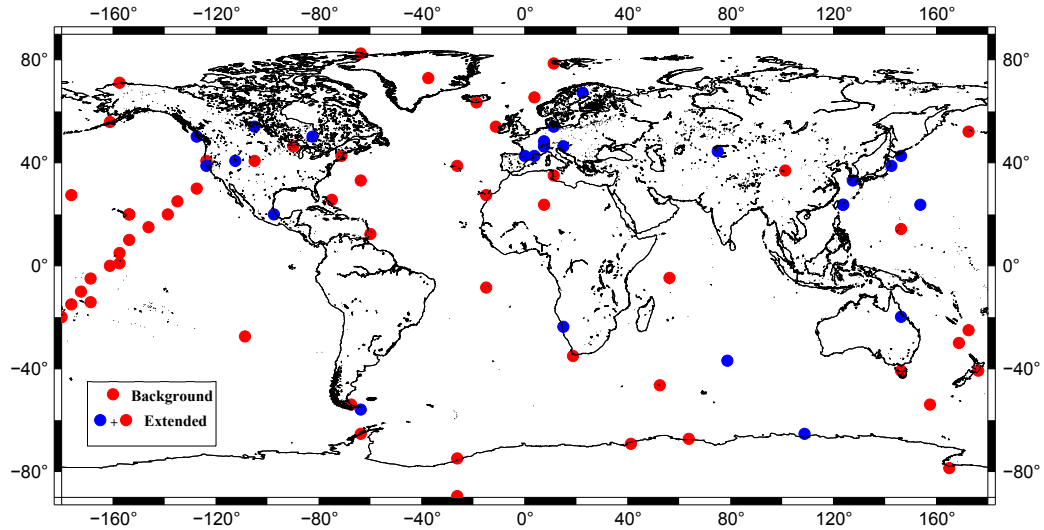


FIGURE 6.4: Location of the surface stations in the so-called "background" (red circles only) and "extended" network (blue and red circles).

Two surface observation datasets

The observations from two networks of surface stations have been assimilated in the different inversions : the "background" and the "extended" networks. Red circles and both red and blue circles on the Figure 6.4 represent the location of surface stations in, respectively, background and extended networks.

The "background" (BG) network is mainly representative of "background" air since the major part of surface stations considered in this network are located far away from the main methane sources. Consequently, atmospheric signals measured at these stations give the background level of methane atmospheric mixing ratio. The "extended" (EXT) network is an extension from the "background" network, where 24 existing stations are added to the "background" network. These additional stations have been selected for their more continental footprint, closer to methane emissions than most of the background sites and therefore providing more direct information on methane emissions. However, being closer to emission areas, they show more variable mixing ratios and are more sensitive to transport errors (Locatelli et al., 2013). In the following, we use BG and EXT to respectively refer to surface measurements in the background and extended configuration of the surface network.

One satellite data set : GOSAT satellite

Methane total weighted-columns retrieved by GOSAT satellite are also assimilated in our study to constrain methane inversions. Version 3.2 of the TANSO-FTS XCH₄ proxy retrievals performed at the University of Leicester (Parker et al., 2011) are used with associated averaging kernels and *a priori* profiles. In the "proxy" method, it is considered that CO₂ and CH₄ spectral absorption bands are close enough to assume that perturbations affecting CO₂ total-column mixing ratio are similar to perturbations affecting CH₄ total-column mixing ratio. Thus, the ratio between the measured CH₄ and CO₂ total-column mixing ratio is not affected by any perturbations due to aerosol scattering. Consequently, the total column of CH₄ is computed according to : $XCH_4 = \frac{CH_4}{CO_2} * XCO_2$, where XCO₂ is coming from (Chevallier et al., 2010) and used as

a proxy for light path to retrieve XCH_4 .

In the following this dataset is referred as PR-LEI standing for "Proxy-Leicester".

6.4.3 Consistency between surface-based and satellite-based inversions

The use of total column CH_4 retrievals from satellite is fundamental for global inversions because they essentially give valuable information in tropical regions, which are known to largely contribute to global methane budget and where few or no surface measurements are available to constraint surface inversions. However, uncertainties may be significant in satellite retrieval datasets. For example, [Houweling et al. \(2014\)](#) and [Bergamaschi et al. \(2013\)](#) have shown that SCIAMACHY satellite retrievals were usable in methane inversions only if a bias correction algorithm were added. [Monteil et al. \(2014\)](#) (in preparation for ACP) have identified several inconsistencies between surface and satellite constraints. They investigate the cause of these inconsistencies and point inconsistencies in the stratosphere but do not provide a definitive answer. In particular, they study does not allow to distinguish between model errors and satellite data errors. Their main assumption is that space or time dependant biases in GOSAT retrievals could be an explanation for these inconsistencies. Other reason could be the modelling of methane vertical transport in the atmosphere. Here, using the different versions of the LMDz model, we estimate the inconsistencies between surface-based and satellite-based inversions and investigate the impact of the representation of vertical transport on these inconsistencies.

Four inversions are performed using GOSAT data without any bias correction and four versions of LMDz : LMDz-TD, LMDz-SP, LMDz-NP as described before, and the former 19-layer model version LMDz-19 ([Chevallier et al., 2005](#)). The optimized atmosphere is sampled at surface stations and compared to surface observations for the different versions of the model (Figure 6.5). Figure 6.5 highlights that methane surface mixing ratios simulated from optimized fluxes using GOSAT satellite retrievals does not fit methane mixing ratios directly measured at surface stations. The different 39-layer versions of the LMDz model show a bias of about +40 ppb, with only a small latitudinal dependency. At the surface, the optimized atmosphere seen by GOSAT is 40 ppb higher on average than the observed atmosphere. Such a bias can be due to satellite retrievals and/or transport modelling errors. The similarity of biases derived by LMDz-TD, LMDz-SP and LMDz-NP (Figure 6.5) highly suggests that sub-grid scale parameterizations of vertical transport only play a minor role on inconsistencies between surface and simulated (based on satellite retrievals constraints) methane mixing ratio. [Monteil et al. \(2014\)](#) found similar results when they studied different sensitivity tests to explain inconsistencies between surface-based and satellite-based inversions. Then, we can conclude that parameterization of deep convection and diffusion are likely not the cause of these inconsistencies.

Interestingly, the 19-layer version of LMDz (LMDz-19) shows a very different picture. Indeed, LMDz-TD19 derives a smaller bias (+15 ppb in the high latitudes of the southern hemisphere decreasing to -10 ppb in the northern hemisphere). Therefore, shifting to an improved vertical resolution, with the associated transport improvements already noticed in [Locatelli et al. \(2014\)](#), degrades the bias of GOSAT inversions.

In order to explain this large difference between the two vertical resolutions of the LMDz model, we compare the simulated vertical profile of methane mixing ratios using LMDz-TD with 19 (LMDz-19) and 39 (LMDz-39) vertical levels (Figure 6.6). These simulations use the optimized methane fluxes derived by inversions using the same atmospheric constraints (GOSAT PR-LEI). However, as seen on the Figure 6.6, they derive a very different profile for methane mixing ratio. The largest differences are found

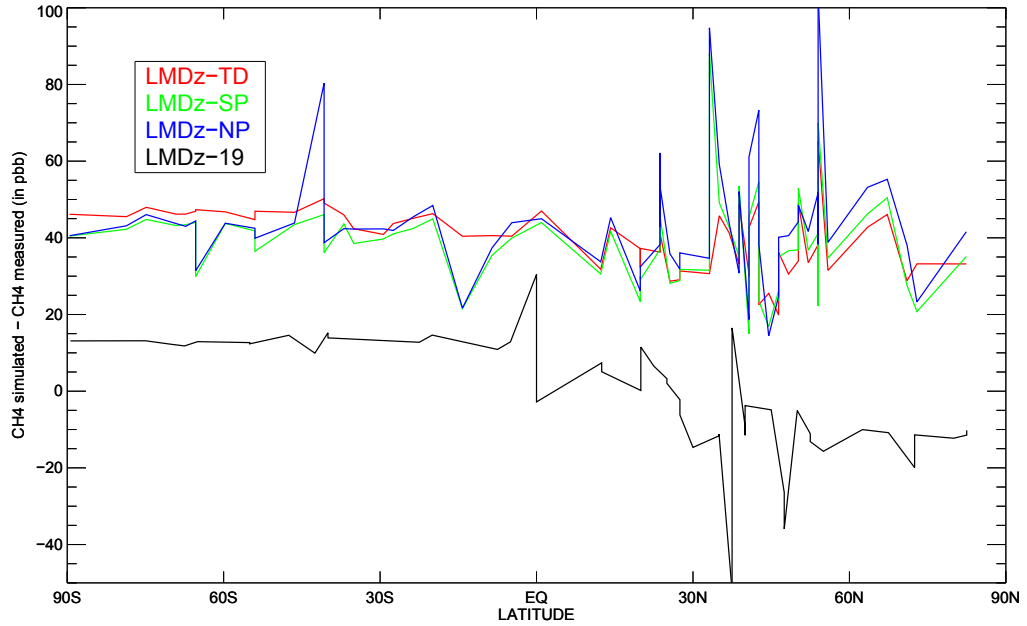


FIGURE 6.5: Latitudinal distribution of bias between simulated methane mixing ratio using an optimized flux distribution coming from a satellite-based inversion and methane mixing ratio measured at different surface stations.

in the simulated stratospheric methane mixing ratios, where LMDz-19 simulates much higher stratospheric methane mixing ratios compared to LMDz-39. On the contrary, and consistently with mass balance, LMDz-19 tropospheric mixing ratios are smaller than LMDz-39. As found in [Locatelli et al. \(2014\)](#), the two versions of the model have very different characteristics to reproduce stratosphere/troposphere exchange (STE). STE is especially fast in LMDz-19 compared to LMDz-39, which induces stronger methane mixing ratio in the stratosphere in LMDz-19. One could think that LMDz-19 show better results than LMDz-39 as biases on figure 6.5 are smaller for LMDz-19 than for LMDz-39. Actually, this is not the case. To figure this out, we compared the modelled methane mixing ratio vertical gradients with the climatology from HALOE instrument ([Groß and Russel III, 2014](#)). We find extremely similar gradient between LMDz-39 and HALOE data. Indeed, the methane gradient between 200 and 3 hPa is 2.2, 5.5 and 5.3 ppb/hPa for respectively LMDz-19, LMDz-39 and HALOE. As a direct consequence of this result, we find that the relative contribution of each vertical layer to the total column is very different in LMDz-39 and LMDz-19 (lines with crosses on Figure 6.6). Stratospheric (Tropospheric) layers in LMDz-39 contribute much less (more) than in LMDz-19. In order to fit the same methane total-column measurements, the inverse system would then derive lower methane fluxes in LMDz-19 in order to simulate lower tropospheric methane mixing ratio compensating the over-contribution of stratospheric methane mixing ratio to the total-column.

Consequently, the relatively smaller bias found in the validation of LMDz-19 satellite flux by surface measurements is (unfortunately) due to an inadequate representation of troposphere/stratosphere methane mixing ratio gradient in this configuration of the model. LMDz-39 derives a stronger bias between simulated and surface measurements, but this is not because of errors in the modelling of troposphere/stratosphere gradient. Overall, the reasons of such biases in the satellite data still need more attention on

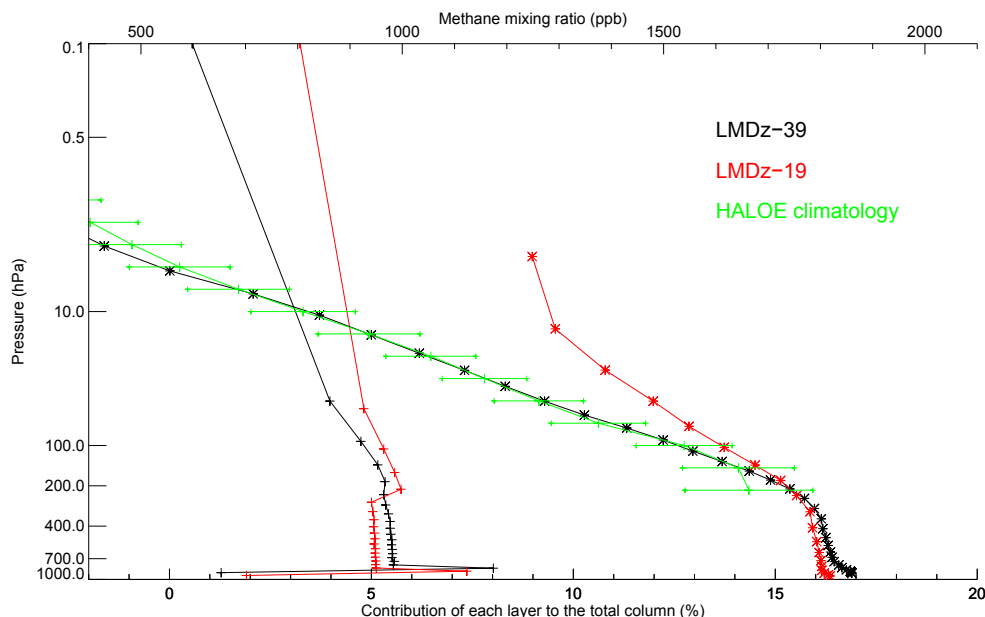


FIGURE 6.6: Vertical profiles of methane mixing ratio in ppb (lines with stars) for LMDz-39 (red) and LMDz-19 (black) compared with HALOE climatology (green). The contribution (in percentage) of each layer of the satellite retrievals to the total column (lines with cross) is also shown for the two versions of the model.

the model side, but most probably also on the data side. As the bias has a relatively simple structure (more or less constant in latitude as shown on Figure 6.5), the satellite-based inversions are performed a second time, removing a latitudinal bias given by the difference of the (each) first inversion with the surface observations considered as unbiased. In the following, in addition to surface-based inversions, we only focus and present results associated to these two-step satellite-based inversions.

6.4.4 Impact of physical parameterizations on global methane fluxes

Figure 6.7 displays the sensitivity of the global methane budget to physical parameterizations by showing the global methane estimates for different inversions using the three different versions of the model (section 6.4.2.2) and the three different data sets (section 6.4.2.3). Using the BG, EXT, and PR-LEI data sets to constrain methane inversions, it is found that the spread (min-max) in derived methane emissions due to changes in physical parameterizations is respectively 2.7, 7.5, and 2.1 TgCH₄ in 2010. These spreads are much lower than the spread of 27 TgCH₄ found in the pseudo-experiment of Locatelli et al. (2013) comparing different methane inversions constrained by pseudo-observations coming from different CTM simulations. The use of different physical parameterizations within the same CTM integrated in the same inverse system has a significant impact on global methane emissions, although smaller than using different CTMs. Indeed, we only test here few parametrizations of the vertical transport in one model. Transport models can also differ in their horizontal resolution and advection, in their meteorological forcings and the way they constrain atmospheric transport, and in the coupling between their different characteristics.

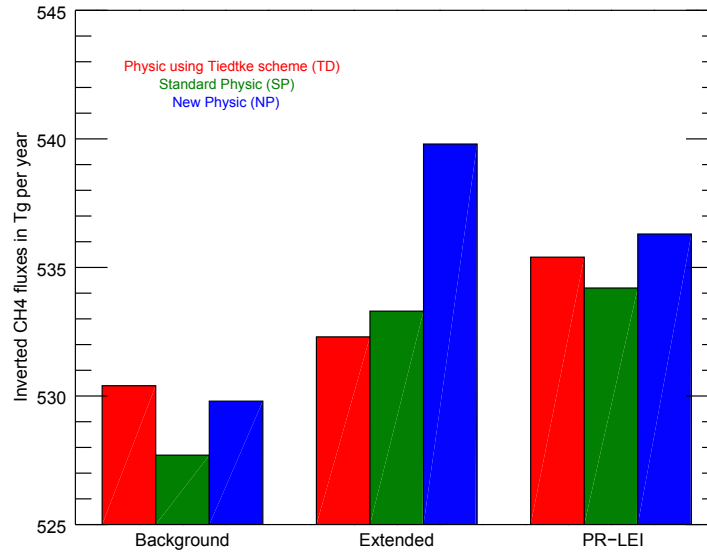


FIGURE 6.7: Methane flux estimates (in TgCH₄/year) for 2010 at the global scale for each inversion (surface inversions using the background and the extended networks and, inversions using Proxy products provided by Leicester institute relative to GOSAT satellite). Inversions using LMDz-TD, LMDz-SP and LMDz-NP as CTM are respectively plotted in red, green and blue.

The largest spread (7.5 TgCH₄) is found for EXT inversions. It is especially due to the EXT-NP inversion, which estimates global methane emissions of 539.8 TgCH₄ in 2010 compared to 532.3 and 533.3 TgCH₄ for respectively EXT-TD and EXT-SP. In particular, this large estimation is due to a specific region (China). The impact of parameterizations on China methane flux estimate is discussed in section 6.4.5. It is also found that, at the global scale, the spread in GOSAT satellite inversions (2.1 TgCH₄) is lower than both BG (2.7 TgCH₄) and EXT (7.5 TgCH₄) surface-based inversions. Several reasons can explain this result. Firstly, sub-grid scale parameterizations in chemistry-transport models mainly impact the modelling of vertical transport. Then, errors in parameterizations could result in a bad representation of methane vertical distribution as shown before, which have larger impacts on simulated mixing ratio at the surface than on simulated total-column. Indeed, a simulation of surface methane mixing ratios, which takes place at a specific level of the atmosphere, could miss or underestimate a methane plume if, for example, methane is transported too quickly in the upper atmosphere. On the contrary, simulated total-column would not miss this methane plume since it would stay in the atmospheric column, even if methane plume would be considered at a wrong level in the computation of total-column. Secondly, surface sources induce weaker signatures in the total column amounts than in surface concentrations (Rayner and O'Brien, 2001). Consequently, one can expect a smaller sensitivity of the inverse system to total-column than to surface measurements.

Discrepancies in global methane estimates derived by inverse modelling are usually largely explained by large-scale characteristics of the modelling of interhemispheric (IH) exchanges. For example, the overestimation of the north/south gradient in methane mixing ratios in the *a priori* simulations of the TM5 model have been assumed to be caused by too slow IH exchanges in TM5 (Houweling et al., 1999; Bergamaschi

et al., 2009; Monteil et al., 2013). Furthermore, in Patra et al. (2011), LMDz-TD (using a coarser horizontal and vertical resolutions than the version of LMDz-TD used here) is in the range of CTMs simulating a too fast IH exchange, which have been shown to induce positive (negative) bias in methane emissions of the northern (southern) hemisphere (Locatelli et al., 2013) after inversion as methane is too fastly diluted.

In order to investigate the representation of IH exchange in our inversions, the table

	Northern hemisphere (NH)	Southern hemisphere (SH)	Difference NH - SH
PRIOR	387.0	126.2	260.8
BG-TD	383.2	113.1	270.1
BG-SP	370.6	121.7	248.9
BG-NP	374.7	119.8	254.9
EXT-TD	386.7	111.4	275.3
EXT-SP	370.0	126.2	243.8
EXT-NP	387.1	117.7	269.4
PR-LEI-TD	376.1	126.2	249.9
PR-LEI-SP	375.4	126.5	248.9
PR-LEI-NP	382.4	120.3	262.0

TABLE 6.4: Annual hemispheric methane fluxes ($\text{TgCH}_4 \text{ year}^{-1}$) for the common year of simulation (2010).

6.4 exposes methane estimates in the northern and the southern hemispheres, and IH methane emission gradient for the common year (2010) of the different inversions. Across all networks constraining inversions, IH gradients simulated by LMDz-TD are larger compared to those simulated by LMDz-SP. Indeed, BG, EXT, and PR inversions using LMDz-TD respectively derive IH gradient 21.2, 31.5 and 1.0 TgCH_4 higher than in inversions using LMDz-SP. These results confirm the conclusion of Locatelli et al. (2014) which have shown from SF_6 simulations that LMDz-SP simulates IH exchange slower than LMDz-TD. Indeed, with slower IH exchange, LMDz-SP simulates, in average, higher (smaller) methane mixing ratios in the northern (southern) hemisphere than in LMDz-TD. In response, the inverse system using LMDz-SP derives smaller (higher) methane emissions in the northern (southern) hemisphere to fit the observed mixing ratio. This leads to a smaller IH gradient in methane emissions compared to what the inverse system derived when it uses LMDz-TD.

Concerning LMDz-NP, results are slightly different. In surface inversions, IH gradient simulated by LMDz-NP are also smaller than those simulated by LMDz-TD, even if the amplitude is reduced between LMDz-NP and LMDz-TD than between LMDz-SP and LMDz-TD. However, it stays in agreement with the study of Locatelli et al. (2014), which have shown that the thermal plume model implemented in LMDz-NP was responsible for a very slightly faster IH exchange in LMDz-NP than in LMDz-SP. Thus, we are not surprised to simulate an IH gradient of 6.0 (BG inversions) and 25.6 TgCH_4 (EXT inversions) higher in LMDz-NP than in LMDz-SP. Moreover, the larger difference between IH gradients simulated by LMDz-TD and LMDz-NP in EXT compared to BG inversions can be explained by the higher number of stations located closer to methane sources, where the thermal plume model strongly affects the boundary layer mixing (Locatelli et al., 2014).

However, the strong IH gradient simulated by PR-LEI-NP was not expected from the study of Locatelli et al. (2014). Indeed, PR-LEI-NP simulates an IH gradient of 262.0 TgCH_4 , which is surprisingly higher than PR-LEI-TD (249.9 TgCH_4). Large methane emissions are derived in tropical regions for the year 2010. These regions are across the

equator and experience important vertical mixing during the year (e.g. moonsoon in India). Therefore, they are sensitive to the parameterisation of this transport. A small but wrong repartition between northern and southern hemisphere of emissions from these regions can strongly affect the IH gradient computed here. Moreover, satellite inversions generally derive stronger methane emissions in the Tropics than surface-based inversions (Bergamaschi et al., 2013; Monteil et al., 2013; Houweling et al., 2014). For example, Houweling et al. (2014) found a shift in the emissions from the extra-tropics to the tropics of $50 \pm 25 \text{ TgCH}_4.\text{year}^{-1}$. Thus, one can expect that IH gradient can be changed because emissions can easily be attributed to southern or northern hemisphere. On the contrary, surface inversions do not have enough constraints to derive accurate tropical emissions which are expected to be high due to strong wetlands and biomass burning methane emissions. The "missing" amount of methane emissions in tropical regions derived by surface inversions are generally shifted to extra-tropics, which lead to less ambiguous definition of the interhemispheric gradient since emissions are clearly attributed to one of the two hemispheres. We expect that PR-LEI-NP would simulate a smaller IH gradient for a year without such large emissions in the Tropics.

As a consequence of the modification of the interhemispheric transport, the amplitude of seasonal cycle in methane fluxes derived by inversions using LMDz-SP (and LMDz-NP in the case of BG and EXT inversions) are smaller than in inversions using LMDz-TD (not shown here). As previously said, the bad representation of IH exchange in LMDz-TD induces an overestimation (underestimation) of methane emissions in the northern (southern) hemisphere during boreal (austral) summer. This results in an overestimated amplitude of seasonal cycle by inversions using LMDz-TD.

6.4.5 Impact of physical parameterizations on regional methane flux estimates

6.4.5.1 Regional estimates

Figure 6.8 shows estimations of methane fluxes by inverse modelling for 12 continental regions using three versions of LMDz atmospheric transport model (LMDz-TD, LMDz-SP and LMDz-NP) within the PYVAR inverse system constrained by three different datasets (BG, EXT and PR-LEI data sets) for 2010. The black lines represent values of prior methane emission estimate for each region. Estimations using LMDz-TD (LMDz-SP and LMDz-NP) are plotted in shades of red (green and blue). Comparing estimates derived by the different inversions allows to analyze the impact of sub-grid scale parameterizations on regional inverted estimates.

In the BG configuration of surface-based inversions (the first three barplots), larger differences are found between inversions using different deep convection schemes than between inversions using different parameterizations of boundary layer mixing. In regions where deep convection is predominant, like in South America Tropical, South East Asia or India, it is not surprising to see BG-SP and BG-NP, which both use the scheme of Emanuel (1991), deriving closer estimates than with BG-TD, which uses the deep convection scheme of (Tiedtke, 1989). For example, BG-SP and BG-NP derive respectively estimates of 79.0 and $79.2 \text{ TgCH}_4.\text{year}^{-1}$ in South East Asia, compared to $76.5 \text{ TgCH}_4.\text{year}^{-1}$ for BG-TD. However, for other regions where deep convection is not predominant compared to vertical diffusion, like North American Temperate, Europe or China, it could be surprising to find closer estimates between inversions using the same deep convection scheme. But, these regions are not much constrained

6. ESTIMATION DES SOURCES ET PUIITS DE MÉTHANE ENTRE 2006 ET 2012 : BILAN ET INFLUENCE DU TRANSPORT ATMOSPHÉRIQUE

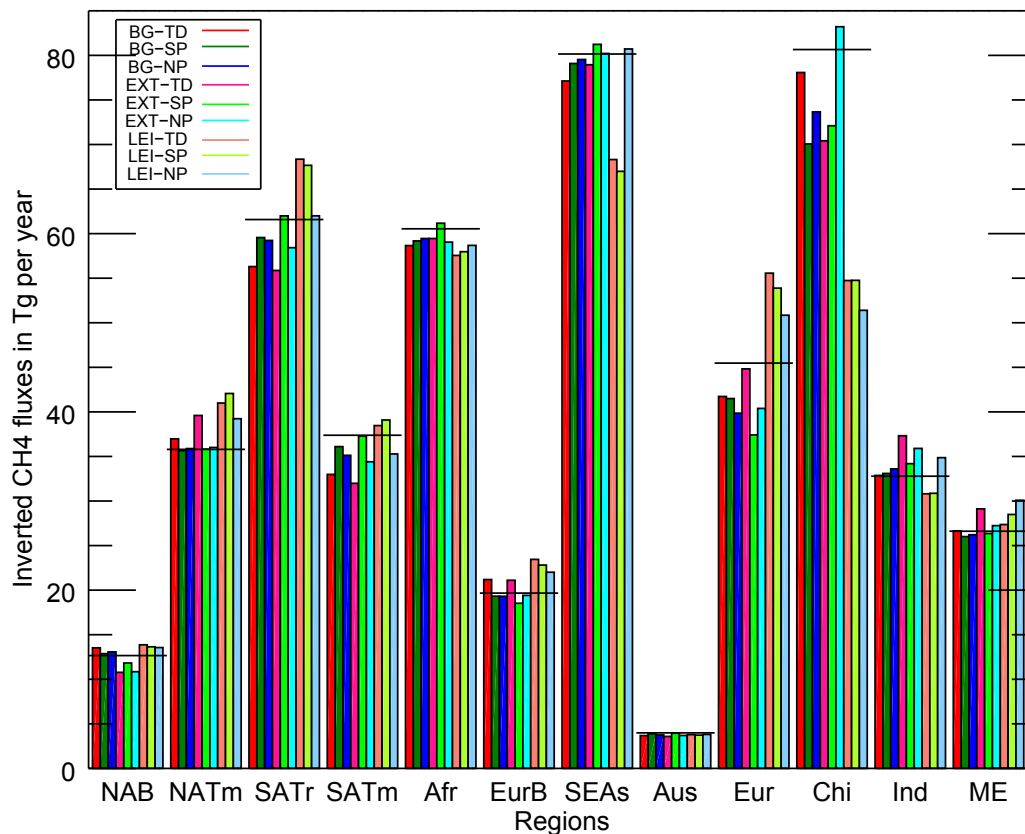


FIGURE 6.8: Estimations of methane fluxes for 12 regions in three versions of the model (LMDz-TD, LMDz-SP and LMDz-NP) using the three types of datasets (BG, EXT and PR-LEI). NAB : North America Boreal ; NATm : North America Temperate ; SATr : South America Tropical ; SATm : South America Temperate ; Afr : Africa ; EurB : Eurasia Boreal ; SEAs : South East Asia ; Aus : Australia ; Eur : Europe ; Chi : China ; Ind : India ; ME : Middle East

in BG inversions (using only remote stations) that is why the modelling of interhemispheric exchange can also have a significant impact on these regional estimates. As mentioned in section 6.4.4, the use of deep convection scheme of Emanuel (1991) has improved the representation of interhemispheric exchanges in LMDz. Thus, LMDz-SP and LMDz-SP both using Emanuel (1991) scheme derive similar estimates in regions like North American Temperate, Europe or China where interhemispheric exchange is probably the main constrain for regional estimation in BG inversions. Boreal region (like North America Boreal and Eurasia Boreal) estimations are also largely dependant of the modelling of large-scale atmospheric transport since they are far from the main sources of methane. Then, LMDz-SP and LMDz-NP derives also similar estimates in these two boreal regions.

In EXT inversions, the thermal plume model (combined with the Yamada (1983) scheme) implemented in LMDz-NP has larger impacts because this scheme plays a key role on the mixing in the boundary layer and can produce large differences in methane mixing ratio simulated for stations located close to high methane sources as in EXT configurations. Indeed, large impacts are found in China (5 stations have been added close to China in EXT network) where EXT-NP derives emissions of $74.7 \text{ TgCH}_4.\text{year}^{-1}$ compared to 68.2 and $67.2 \text{ TgCH}_4.\text{year}^{-1}$ for respectively EXT-SP and EXT-TD. Tropical

regions (like in South America Tropical) are also affected by the thermal plume model, even if it is less obvious than in China, because there are very few stations constraining tropical emissions in EXT surface-based inversions.

On the contrary, in PR-LEI inversions, GOSAT data bring strong constraints in tropical regions where methane sources may be large. Thus, it is not surprising to see large impacts on tropical region estimates in satellite-based inversions due to the implementation of the thermal plume model, which plays an important role at the base of deep convection layers (Locatelli et al., 2014) (see the last three barplots on Figure 6.8). Indeed, PR-LEI-TD and PR-LEI-SP derive methane emissions of 68.3 and 67.0 $\text{TgCH}_4\cdot\text{year}^{-1}$ in South East Asia, while PR-LEI-NP derives methane emissions of 80.7 $\text{TgCH}_4\cdot\text{year}^{-1}$ in the same region. In South America, PR-LEI-TD and PR-LEI-SP derive larger methane emissions (68.4 and 67.7 $\text{TgCH}_4\cdot\text{year}^{-1}$) compared to PR-LEI-NP which derive methane emissions of 62.0 $\text{TgCH}_4\cdot\text{year}^{-1}$. As a consequence, satellite-based inversions derive very different spatial partition in methane emissions between tropical regions, although total methane emissions in the Tropics are very close between these three different inversions.

Overall and across the different datasets assimilated, the parameterization producing the largest changes among the different inversions at regional scale is the thermal plume model (combined with the Yamada (1983) scheme). It is especially true in China and in South East Asia. Among datasets, the use of satellite data compared to surface observations also induces significant changes in tropical regions (e.g. South East Asia and Tropical South America). More quantitatively, table 6.5 summarizes the spread (maximum - minimum) in BG, EXT and PR-LEI inversions due to changes in physical parameterizations. The spread is expressed in percentage and in $\text{TgCH}_4\cdot\text{year}^{-1}$. The numbers are relative to the common year of inversions, which is 2010. However, average spreads between 2007 and 2011 are also showed for BG and EXT inversions (inside the brackets in table 6.5) since surface-based inversions have been run for several years.

First, one can notice that spreads (in percentage) at regional scales caused by changes in sub-grid scale parameterizations appear larger at regional scales compared to what we found at the global scale. Indeed, spread at the global scale is 0.5% (2.7 $\text{TgCH}_4\cdot\text{year}^{-1}$), 1.4% (7.5 $\text{TgCH}_4\cdot\text{year}^{-1}$) and 0.4% (2.1 $\text{TgCH}_4\cdot\text{year}^{-1}$) for respectively BG, EXT and PR-LEI inversions for the specific year of 2010. At regional scales, spreads are ranged from 1% to 11% (0.2 to 8.0 $\text{TgCH}_4\cdot\text{year}^{-1}$), 3% to 18% (0.4 to 12.8 $\text{TgCH}_4\cdot\text{year}^{-1}$) and 2% to 17% (0.1 to 12.4 $\text{TgCH}_4\cdot\text{year}^{-1}$) for respectively BG, EXT and PR-LEI inversions. Across the networks, the largest spreads (in $\text{TgCH}_4\cdot\text{year}^{-1}$) are found in China, South East Asia, Europe, South America Tropical and South America Temperate. Furthermore, similarly to what we found at the global scale, spreads in surface-based inversions are larger in EXT compared to BG configuration of the surface network. Indeed, constraints added in EXT inversions are located closer to large methane mixing ratio gradients where modelling of boundary layer mixing impact much atmospheric methane levels. Yet, skills of the different LMDz versions (LMDz-TD, LMDz-SP and LMDz-NP) to simulate PBL mixing may be highly different (Locatelli et al., 2014). Thus, the different configurations of the inverse system induce larger spreads in EXT compared to BG inversions. Generally, the mean in regional spread is 5%, 11% and 8% for respectively BG, EXT and PR-LEI inversions. It gives a mean error of 8% at regional scales considering the three types of inversions.

Similarly to results found for global scale, spreads at regional scales when using different parameterizations in LMDz are smaller than spreads between inversions using different atmospheric transport models (Locatelli et al., 2013). Indeed, in Locatelli

TABLE 6.5: Mean of regional methane flux spread (maximum - minimum) in $\text{TgCH}_4 \text{ year}^{-1}$ for 2010. Values inside the brackets are average spreads between 2007 and 2011.

	BG		EXT		PR-LEI	
	%	Tg.yr^{-1}	%	Tg.yr^{-1}	%	Tg.yr^{-1}
Nth Amer. Bor.	5.0 (4.5)	0.7 (0.6)	9.4 (7.7)	1.0 (0.9)	2.2	0.3
Nth Amer. Temp.	3.7 (3.4)	1.3 (1.2)	10.2 (9.9)	3.8 (3.7)	7.0	2.9
Sth Amer. Trop.	5.6 (7.2)	3.3 (4.0)	10.4 (9.1)	6.1 (5.1)	9.8	6.4
Sth Amer. Temp.	9.0 (8.7)	3.1 (3.0)	15.3 (12.5)	5.3 (4.3)	10.1	3.8
Africa	1.3 (1.2)	0.8 (0.7)	3.5 (2.7)	2.1 (1.6)	1.8	1.1
Euras. Bor.	9.4 (9.4)	1.9 (1.9)	13.1 (14.2)	2.6 (2.8)	7.5	1.5
Sth East Asia	3.1 (4.0)	2.4 (3.1)	2.9 (3.8)	2.3 (2.9)	17.2	12.4
Australia	5.5 (6.6)	0.2 (0.3)	9.6 (9.8)	0.4 (0.4)	2.6	0.1
Europe	4.6 (9.0)	1.9 (3.9)	18.1 (13.7)	7.4 (5.8)	9.6	4.8
China	10.8 (8.6)	8.0 (6.2)	17.0 (10.5)	12.8 (7.5)	6.3	3.4
India	2.2 (4.8)	0.7 (1.5)	8.8 (6.4)	3.1 (2.2)	12.8	4.1
Middle East	2.5 (2.7)	0.6 (0.7)	10.0 (9.2)	2.8 (2.4)	9.4	2.7

et al. (2013), spreads between inversions using different CTMs are ranged from 23% for Europe to 48% for South America, with an average of 33%. Consequently, errors related to physical parameterizations explain, in average, 24% of the total transport model errors, but it can reach more than 50% in some specific regions. Therefore, the different versions of LMDz explore more of the transport error than at the global scale.

Finally, we find that methane emissions in tropical regions have an unexpected different spatio-temporal distribution between continents depending on physical parameterizations used : PR-LEI-TD and PR-LEI-SP deriving larger methane emissions in South America, while PR-LEI-NP derives larger emissions in South East Asia. This uncertainty to attribute methane emissions between these two important regions of the methane cycle also points towards different source categories responsible for the inferred emissions : natural wetlands for South America and anthropogenic emissions for South East Asia.

6.4.6 Conclusions

This study presents the sensitivity of the recent methane budget estimated by PYVAR inversion system to LMDz sub-grid scale physical parameterizations for vertical transport. Indeed, three versions of LMDz (LMDz-TD, LMDz-SP and LMDz-NP) have

been used within the PYVAR system to simulate atmospheric transport of methane emitted at the surface. Three methane observation datasets (two surface datasets and one GOSAT satellite dataset) have been used to constrain these different atmospheric inversions. Finally, comparisons between these 9 inversions give a quantification of the impact of LMDz sub-grid scale parameterizations on methane inverted estimates.

At the global scale, we found spread due to physical parameterization uncertainties of 2.7, 7.5 and 2.1 TgCH₄.year⁻¹ in BG, EXT and PR-LEI inversions, which represent respectively 0.5%, 1.4% and 0.4% of global methane emissions. Besides, the analysis of north/south gradient in inferred emissions confirms that the using of Emanuel (1991) deep convection scheme improves the representation of IH exchange, as it has been mentioned in Locatelli et al. (2014). Indeed, inversions (based on LMDz-SP or LMDz-NP model) using Emanuel (1991) scheme have smaller interhemispheric methane emission gradients than inversions (based on LMDz-TD model) using Tiedtke (1989) scheme, which are known to simulate too fast interhemispheric exchange (Patra et al., 2011).

At regional scales, spreads due to physical parameterization uncertainties are larger than at the global scale. Spreads in 12 continental regions represent, in average, 5.2%, 10.7% and 8.2% of methane emissions in these regions for respectively BG, EXT and PR-LEI inversions. The thermal plume model combined with the vertical diffusion scheme of Yamada (1983) are implemented in LMDz-NP and they largely impact regional estimations, especially when considering atmospheric constraints located close to high methane sources (like in tropical regions for satellite-based inversions).

Moreover, it is found that surface-based and satellite-based inversions are inconsistent. It is particularly obvious when one compares surface methane measurements with methane mixing ratio simulated, using methane fluxes derived by satellite-based inversion, and sampled at the surface. We show here that these inconsistencies are not related to physical parameterizations of the vertical transport. However, we show that a poor representation of methane gradient at the transition between troposphere and stratosphere may partly explain the inconsistencies between surface-based and satellite-based inversions.

After the quantification of transport model errors in global and regional methane estimates thanks to a TransCom intercomparison (Locatelli et al., 2013) and the evaluation of new parameterizations in LMDz (Locatelli et al., 2014) to simulate trace gas concentrations, this paper is one more step in the understanding of the impact of model errors, especially related to LMDz model, in methane inversions. In these different studies, we give indications on the degree of confidence in global and regional methane estimated by inverse modelling relatively to model errors. At the global scale, the impact of transport model (5% of global methane emissions) and physical parameterizations errors (0.8%) are acceptable. However, the picture is different at regional scales with transport errors up to 50% with possibly a dominant part explained by error on the vertical transport for some regions. This assessment shows that detection of methane emission anomalies at regional scales can suffer from large uncertainties. For example, we show here that methane emissions in tropical regions have an unexpected different spatio-temporal distribution between continents depending on physical parameterizations used. Such an uncertainty limits the attribution of methane emissions to particular processes, when they are dominant over a region. Our results push towards carrying more efforts for the improvement of transport model in order to limit transport errors by increasing collaboration between experts in atmospheric dynamics and experts in tracer transport on the one hand, and by developing measurements campaign in order to better evaluate transport models on the other hand.

6.5 Variabilité interannuelle des émissions de méthane entre 2006 et 2012

La section 2.3.3 a détaillé les différents débats qui alimentent les discussions scientifiques autour des variations récentes des émissions mondiales de méthane. On présente ici des résultats pour proposer des explications sur les variations des émissions de méthane entre le **début de l'année 2006 et la fin de l'année 2012** à partir des inversions réalisées par le système inverse PYVAR-LMDz-SACS. On reviendra notamment sur la forte augmentation du taux de croissance de méthane dans l'atmosphère observée au cours de l'année 2007 (Section 2.3.3.3). De plus, les variations interannuelles après 2008 sont encore peu commentées dans la communauté scientifique. On proposera alors ici un scénario pour expliquer les variations des émissions de méthane pour la période après 2008 au regard des résultats obtenus à partir de nos différentes inversions.

Tout d'abord, on présente les variations interannuelles des émissions de méthane à l'échelle globale, dans les tropiques (latitudes comprises entre -30° et 30°), dans les régions extra-tropicales des hémisphères nord (latitudes au-delà de 30°) et sud (latitudes inférieures à -30°) entre 2006 et 2012 (figure 6.9). Les différentes courbes représentent la moyenne glissante (sur douze mois) des flux de méthane optimisés. Avant d'analyser les valeurs des émissions optimisées sur différentes périodes, on peut remarquer que les ordres de grandeur dans chacune des quatre grandes zones géographiques présentées sur la figure 6.9 diffèrent fortement. Les émissions dans les tropiques, les régions extra-tropicales de l'hémisphère nord et de l'hémisphère sud représentent respectivement 60%, 38% et 2% des émissions globales. La répartition des émissions entre ces trois grandes régions est très comparable avec les valeurs disponibles dans l'étude de [Houweling et al. \(2014\)](#) qui donnent une répartition moyenne de 63%, 35% et 2%. Il est très probable que le fait que [Houweling et al. \(2014\)](#) trouvent des émissions plus faibles dans les régions extra-tropicales de l'hémisphère nord et plus fortes dans les tropiques, soit lié à la représentation des échanges inter-hémisphériques par leur système inverse basé sur le modèle TM5. Ce modèle est connu pour sous-estimer la vitesse des échanges inter-hémisphériques ([Patra et al., 2011](#)), ce qui entraîne un gradient nord-sud des émissions de méthane plus prononcé que pour LMDz et nécessite moins d'émissions dans les moyennes latitudes de l'hémisphère nord pour s'ajuster aux concentrations lors de l'inversion. De plus, entre les 9 inversions menées ici, on remarque que la répartition des émissions entre les régions extra-tropicales de l'hémisphère nord, des tropicales ont des différences non négligeables selon la version de LMDz utilisée dans l'inversion. Ainsi, pour des raisons similaires à ce qu'on a évoqué pour TM5, il est très probable que la représentation des échanges inter-hémisphériques dans les différentes versions de LMDz influe ici les bilans de ces régions. En effet, on remarque sur la figure 6.9 que les inversions utilisant LMDz-SP et LMDz-NP trouvent des émissions $\sim 10 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ plus grandes dans les tropiques et $\sim 15 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ plus faibles dans les régions extra-tropicales de l'hémisphère nord que les inversions utilisant LMDz-TD. Ces résultats sont en cohérence avec l'amélioration des échanges inter-hémisphériques trouvée dans le cas des versions de LMDz utilisant le schéma de convection profonde de [Emanuel \(1991\)](#), que l'on a évoquée plusieurs fois dans les chapitres précédents.

La figure 6.9 montre également une grande cohérence entre les inversions de surface et les inversions satellites (lignes tiretées) aux échelles planétaires et hémisphériques. Ainsi, la correction apportée aux données satellites (voir section 6.1.4)

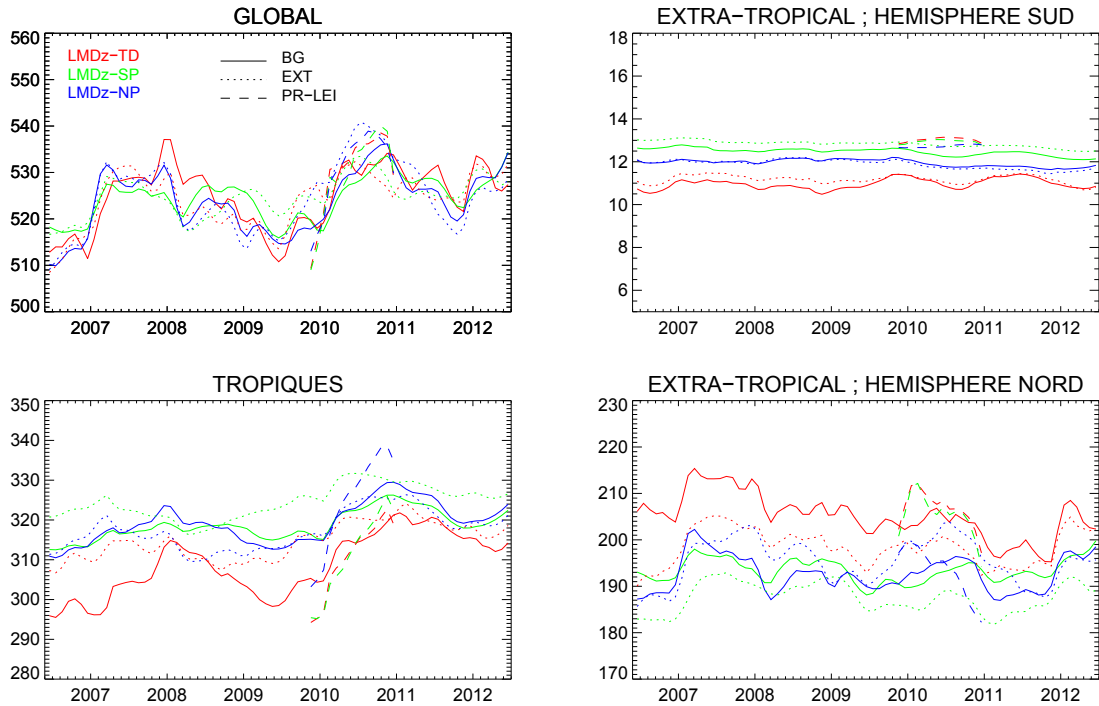


FIGURE 6.9: Moyenne glissante des émissions désaisonnalisées entre 2006 et 2012 pour les 9 types d'inversions à l'échelle globale, dans les tropiques, dans les régions extra-tropicales de l'hémisphère nord et de l'hémisphère sud. Les inversions utilisant la version LMDz-TD, LMDz-SP et LMDz-NP sont respectivement représentées en rouge, vert et bleu. Les inversions de surface contraintes par BG et EXT sont respectivement représentées par des traits pleins et des traits pointillés. Les inversions contraintes par les données satellites de GOSAT (PR-LEI) sont représentées par des traits tiretés.

permet d'obtenir des émissions de méthane optimisées en cohérence avec les émissions optimisées grâce aux observations de surface. De plus, le phasage de la variabilité des flux de méthane est très cohérent entre les inversions de surface et les inversions satellites. Par exemple, les deux types d'inversions trouvent une forte augmentation à l'échelle globale due essentiellement aux tropiques au début de l'année 2010 (voir section 6.5.2).

La variabilité des émissions de méthane entre 2006 et 2012 est étudiée dans les paragraphes suivants en distinguant deux périodes distinctes : la période entre 2006 et 2008, et la période après 2008.

6.5.1 La période 2006-2008

En 2007, le taux de croissance du méthane atmosphérique a fortement augmenté comparé au taux de croissance observé entre 2000 et 2006 (Dlugokencky et al., 2009; Rigby et al., 2008; Bousquet et al., 2011; Sussmann et al., 2012). Analysant la courbe relative à l'échelle globale (en haut à gauche sur la figure 6.9), on trouve que les résultats de nos inversions témoignent également d'une forte augmentation des émissions globales entre 2006 et 2007. En effet, la moyenne des émissions passe de 512.6 $\text{TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ en 2006 à 528.3 $\text{TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ en 2007, soit une augmentation de 15.7 $\text{TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ (Tableau 6.6). Cette augmentation est dans l'ordre de grandeur des esti-

mations trouvées dans d'autres études. Par exemple, [Bousquet et al. \(2011\)](#) estiment l'augmentation des émissions globales à $28 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ entre 2006 et 2007 et ils estiment également que les émissions restent fortes en 2008 (25 TgCH_4 plus forte qu'en 2006.). De même, [Houweling et al. \(2014\)](#) ont estimé que les émissions de méthane sur la période juillet 2006-juillet 2008 étaient 27 à $35 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ plus importantes que sur la période juillet 2004-juillet 2006. L'attribution de cette augmentation des émissions à l'échelle planétaire est essentiellement attribuée par [Bousquet et al. \(2011\)](#) et [Houweling et al. \(2014\)](#) aux régions tropicales de l'hémisphère nord.

Dans notre étude, les émissions des régions tropicales ont augmenté de 5.6 TgCH_4 entre 2006 et 2007 (Tableau 6.6). Cependant, le calcul de l'amplitude de cette augmentation sur 2007 seulement est probablement masqué par le fait que, d'une part, le pic des émissions de méthane dans les tropiques est légèrement décalé au début de l'année 2008 et que, d'autre part, l'augmentation des émissions a débuté au cours de l'année 2006. De plus, les inversions contraintes par les données satellites GOSAT n'étant pas disponibles sur la période 2006-2008, les estimations des émissions dans les tropiques sont probablement sous-estimées. En effet, il y a généralement un décalage d'une partie des émissions des régions extra-tropicales vers les tropiques dans les inversions satellites, comparé aux émissions obtenues avec des inversions de surface ([Houweling et al., 2014](#)).

Dans les régions extra-tropicales, on remarque une augmentation de $10.1 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ des émissions de méthane entre 2006 et 2007, qui est répartie entre l'Europe de l'Est, l'Eurasie boréale et la Chine.

Ces résultats sont cohérents avec de précédentes études qui ont attribué cette augmentation à deux anomalies climatiques majeures et une anomalie dans les émissions anthropiques :

- occurrence d'un fort événement La Niña en 2007-2008 qui a engendré de fortes anomalies dans les précipitations des régions tropicales ([Schneider, 2008](#); [Dlugokencky et al., 2009](#)) (voir figure 6.12)
- vague de chaleur à l'automne 2007 dans les régions boréales, et notamment en Sibérie ([Dlugokencky et al., 2009](#))
- augmentation des émissions anthropiques dans les régions extra-tropicales de l'hémisphère nord ([Bergamaschi et al., 2013](#))

Afin de faire encore mieux ressortir les variations interannuelles, l'analyse de la figure 6.10 montre l'évolution temporelle de l'anomalie des émissions (en $\text{TgCH}_4.\text{an}^{-1}$) en prenant comme référence la période juin 2009 à juin 2011 (période commune à nos 9 inversions) pour les régions tropicales, les régions extra-tropicales de l'hémisphère nord (HN) et hémisphère sud (HS), et pour la surface terrestre totale. Sur cette figure, on confirme que le phasage de l'anomalie de 2007-2008 est différent entre les tropiques et le HN : l'anomalie se produit essentiellement en début d'année 2008 dans les régions tropicales, tandis qu'elle a lieu en début d'année 2007 pour les régions extra-tropicales de HN. L'amplitude des anomalies dans ces deux régions est assez similaire ($\sim 10 \text{ TgCH}_4$), même si la vitesse d'apparition est très différente. L'anomalie dans les régions extra-tropicales de HN se produit sur quelques mois, alors que l'anomalie dans les tropiques se produit graduellement entre la fin 2006 et le début 2008. La figure 6.11 qui montre l'évolution temporelle de l'anomalie des émissions pour l'Amérique du Sud tropicale, la Chine, l'Asie du Sud-Est et l'Europe permet d'aller plus loin. On confirme que l'anomalie dans les régions extra-tropicales de HN est répartie entre l'Europe, l'Eurasie boréale et la Chine. L'Europe de l'Est et l'Eurasie boréale témoignent d'une anomalie de $+4 \text{ TgCH}_4$ (non montrée ici) tandis qu'on trouve en Chine une anomalie de $+7.2 \text{ TgCH}_4$ entre 2006 et 2007. Le reste de l'anomalie mondiale étant attribué aux régions tropicales, notamment en Amérique du Sud, et une contribution plus faible des régions boréales d'Amérique du Nord est aussi détectée (non montrée ici).

	Global	EX-NH	EX-SH	TROP
2006	512.6 [508.5-518.2]	190.8 [182.9-206.1]	11.9 [10.7-13.0]	309.8 [295.9-320.7]
2007	528.3 [525.7-531.4]	200.9 [192.5-213.1]	12.0 [11.1-13.0]	315.4 [304.3-322.5]
2008	523.7 [519.5-529.4]	197.4 [189.5-207.6]	12.0 [10.9-12.9]	314.3 [309.8-319.4]
2009	515.1 [510.8-520.7]	191.2 [184.8-201.4]	11.9 [10.9-12.9]	312.0 [298.5-323.0]
2010	533.2 [527.7-539.8]	199.7 [188.9-208.4]	12.1 [10.9-13.1]	321.4 [313.8-331.7]
2011	526.5 [523.4-530.6]	191.2 [184.5-198.5]	11.9 [11.4-12.7]	323.3 [319.5-328.1]
2012	530.8 [527.4-534.4]	198.0 [189.0-202.4]	11.6 [10.8-12.5]	321.2 [314.2-326.6]

TABLE 6.6: Bilan des sources et puits de méthane estimés par modélisation inverse entre 2006 et 2012 pour l'ensemble de la surface terrestre (Global), les régions extra-tropicales de l'hémisphère nord (EX-NH) et de l'hémisphère sud (EX-SH) et des régions tropicales (TROP). Les chiffres entre crochets représentent la fourchette des différentes estimations en montrant le minimum et le maximum des estimations. Les chiffres en gras représentent l'estimation moyenne pour les différentes régions et les différentes années.

6.5.2 La période 2009-2012

A partir du printemps 2008, on retrouve un bon accord de l'ensemble des inversions à l'échelle globale (figure 6.9). Ces simulations inverses estiment une baisse régulière des émissions jusqu'à mi-2009. A l'échelle planétaire, les émissions passent de 528.3 $\text{TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ en 2007 à 515.1 $\text{TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ en 2009. Cette baisse apparaît corrélée avec la baisse des émissions dans les régions tropicales (figure 6.9) et notamment en Amérique du Sud tropicale (figure 6.11). De plus, cela est en accord avec l'étude de [Crevoisier et al. \(2013\)](#). En effet, dans cette étude, les auteurs rapportent l'évolution des concentrations de méthane en milieu de troposphère dans les tropiques à partir des données de l'interféromètre IASI (instrument à bord du satellite MetOp) et montrent une diminution du taux de croissance du méthane en milieu troposphère dans les tropiques après 2008. L'une des explications est la diminution des précipitations dans les tropiques au cours de cette période, et suggère donc un lien avec les émissions par les zones inondées. Le tableau 6.6 témoigne également d'une baisse des émissions dans les régions extra-tropicales de l'hémisphère nord : les émissions passent de 200.9 TgCH_4 en 2007 à 191.2 TgCH_4 en 2009. Finalement, les tendances négatives apparaissant dans les émissions en Europe et en Amérique du Sud tropicale sur la figure 6.11 permettent d'attribuer à des zones géographiques plus précises la diminution des émissions des régions tropicales et des régions extra-tropicales de l'hémisphère nord.

Le début de l'année 2010 est marqué par une forte augmentation des émissions à l'échelle planétaire. En effet, la moyenne des émissions globales passent de 515.1 $\text{TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ en 2009 à 533.2 $\text{TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ en 2010. Cette augmentation atteint son maximum à la fin de l'année 2010, et de fortes émissions persistent au cours des

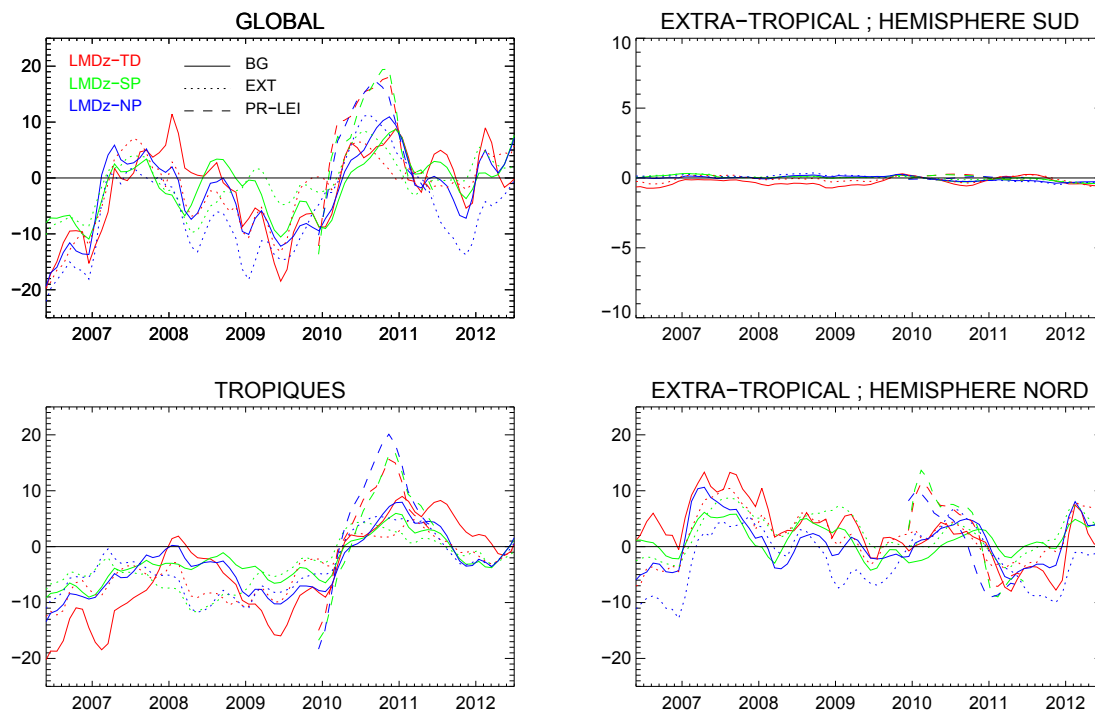


FIGURE 6.10: Anomalie des émissions de méthane (en Tg de CH₄ par an) en prenant la période juin 2009 à juin 2011 comme période de référence. Les résultats sont présentés à l'échelle globale, pour les tropiques, les régions extra-tropicales des hémisphères nord et sud pour LMDz-TD (rouge), LMDz-SP (vert) et LMDz-NP (bleu).

années 2011 et 2012. L'attribution de cette anomalie semble sans équivoque puisque l'ensemble des inversions estime une forte augmentation des émissions dans les tropiques. En moyenne, l'augmentation de l'anomalie dans les tropiques atteint 18.1 TgCH₄.an⁻¹ mais elle est plus prononcée dans les inversions assimilant les données satellites, qui contraignent mieux les régions tropicales. En effet, l'anomalie des émissions dans les tropiques atteint 20 TgCH₄.an⁻¹ pour les inversions satellites, alors qu'elle atteint tout juste 10 TgCH₄.an⁻¹ pour les inversions de surface (Figure 6.10). Le tableau 6.6 présentant les bilans par régions confirme ces résultats car il indique que les émissions tropicales sont passées de 312.0 TgCH₄ en 2009 à 321.4 TgCH₄ en 2010.

Si l'on s'intéresse à la répartition régionale de l'anomalie dans les tropiques (voir figure 6.11), on s'aperçoit que les émissions en Amérique du Sud tropicale et en Asie du Sud-Est ont augmenté respectivement, en moyenne, de plus de 3 TgCH₄ et 4 TgCH₄ au cours de cette période. Ainsi, contrairement à l'anomalie détectée dans les tropiques en 2007, cette anomalie semble partagée entre différentes régions tropicales. Il est intéressant de noter que le phasage des anomalies est différent selon les différentes versions du système inverse. En Asie du Sud-Est, l'inversion basée sur LMDz-NP estime le pic de l'anomalie quelques mois plus tôt que dans les inversions basées sur LMDz-TD et LMDz-SP. Au contraire, en Amérique du Sud, l'inversion satellite basée sur LMDz-TD estime une anomalie plus précoce que les inversions basées sur LMDz-SP et LMDz-NP. De plus, la moyenne du maximum de la moyenne glissante sur 12 mois des émissions en 2010 atteint 538.1 TgCH₄.an⁻¹ et est supérieure au 531.4 TgCH₄.an⁻¹ atteint en 2007. Les totaux globaux diffèrent de 4.9 TgCH₄ entre 2007 (528.3 TgCH₄) et 2010

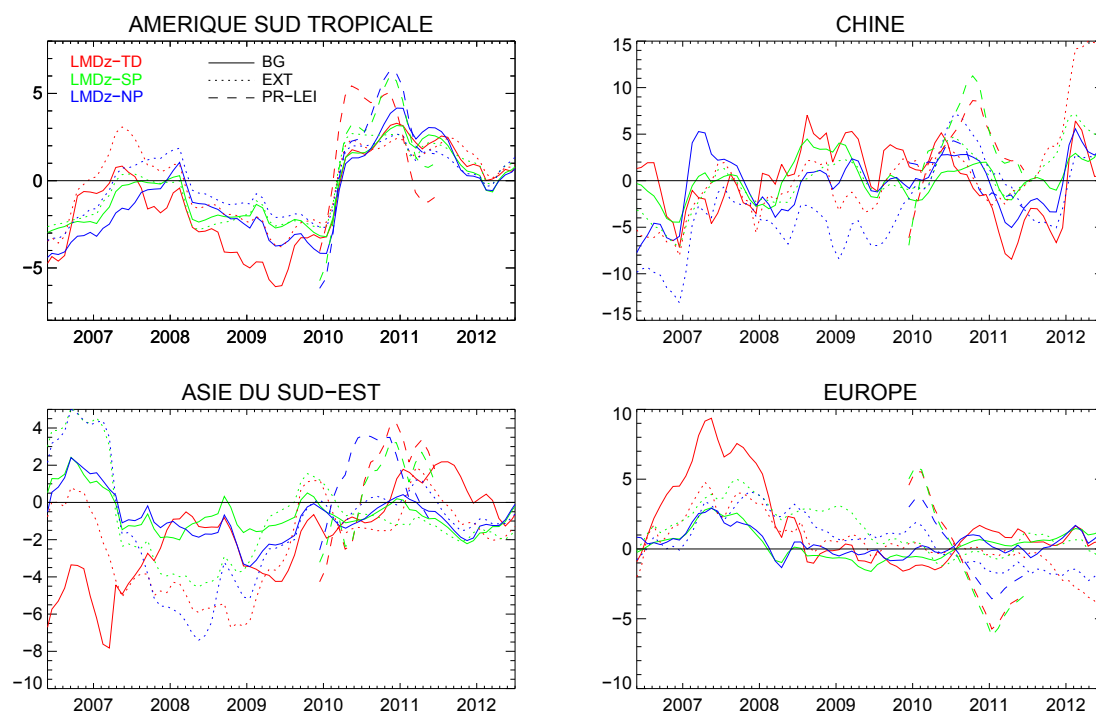


FIGURE 6.11: Anomalie des émissions de méthane (en Tg de CH_4 par an) en prenant la période juin 2009 à juin 2011 comme période de référence. Les résultats sont présentés pour l'Amérique du Sud tropicale, l'Asie du Sud-Est, la Chine et l'Europe.

(533.2 Tg CH_4) (Tableau 6.6). Sachant que la période 1999-2006 a été marquée par une longue période de stagnation des concentrations atmosphériques de méthane sans forte tendance des radicaux OH (Montzka et al., 2011), on peut affirmer avec un niveau de confiance élevé que la quantité de méthane émise au cours de l'année 2010 a été la plus importante depuis le début des années 2000, ce qui en fait une année singulière. Il faut également remarquer que cette anomalie ne se limite pas exclusivement à l'année 2010 car elle semble réellement cesser à la fin du premier trimestre de l'année 2011.

L'anomalie observée en 2010-2011 dans les résultats des inversions pour les régions tropicales est très probablement liée à des conditions climatiques particulières. La figure 6.12 présente l'évolution temporelle des occurrences d'événements El Niño/La Niña à partir du calcul de l'indice El Niño océanique (Trenberth and Hoar, 1997). Cet indice fait partie de l'un des indices permettant de détecter l'occurrence d'un événement El Niño ou La Niña. Il prend en compte l'anomalie de la température de la surface de la mer dans la région Niño 3.4 (latitudes comprises entre 5° N et 5° S et longitudes comprises entre 120° O et 170° O) et un événement El Niño (La Niña) a lieu lorsque l'anomalie est supérieure à +0.5 degré (inférieure à -0.5 degré) sur une période supérieure à 5 mois consécutifs comme il est décrit dans Trenberth and Hoar (1997). La figure 6.12 montre l'occurrence de deux événements La Niña en 2007-2008 et 2010-2011 qui coïncident fortement avec les deux anomalies majeures relevées dans les régions tropicales depuis 2006. L'impact de ENSO (El Niño Southern Oscillation) sur les émissions liées aux feux de biomasse a été étudié par van der Werf et al. (2006), tandis que l'impact de ENSO sur les émissions par les zones humides est étudié dans Hodson et al. (2011). Hodson et al. (2011) ont notamment montré une forte corrélation entre les anomalies des émissions de CH_4 par les zones humides dans les tropiques

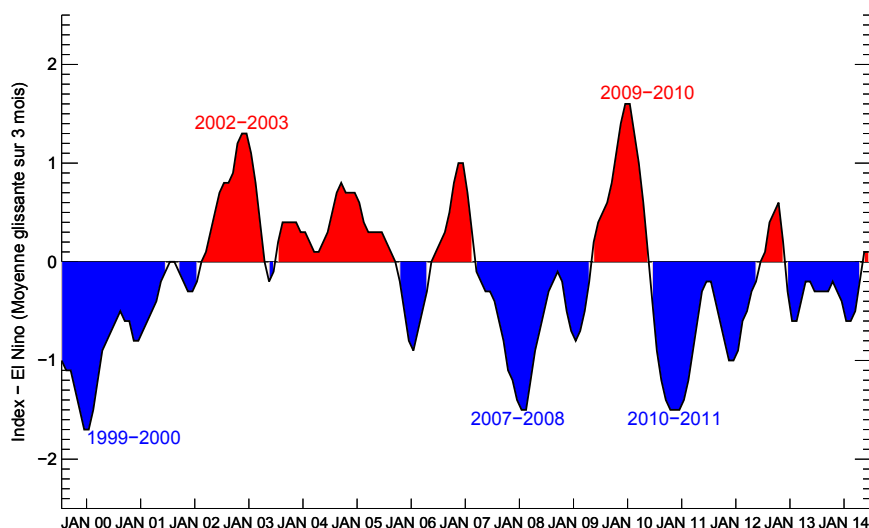


FIGURE 6.12: Evolution temporelle de l'indice El Niño relativement à la région Niño 3.4 (Trenberth and Hoar, 1997) entre 2000 et 2014. Les événements El Niño sont marqués en rouge tandis que les événements La Niña sont repérés en bleu.

et les événements El Niño/La Niña. Il est montré qu'une anomalie moyenne de -9 ± 3 $\text{TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ se produit durant les événements El Niño et qu'au contraire une anomalie positive moyenne de $+8 \pm 4$ $\text{TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ a lieu durant les événements La Niña. Ici, on retrouve une anomalie moyenne dans les tropiques de 5.1 $\text{TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ en 2007-2008 comparée à 2006 et de 10.3 $\text{TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ en 2010-2011 comparée à 2009, dans la gamme des émissions de Hodson et al. (2011). Il est fort probable que l'anomalie des émissions dans les tropiques en 2007 et 2010 soit liée à ces événements climatiques majeurs, comme l'ont évoqué Bousquet et al. (2011), Dlugokencky et al. (2011) et Bloom et al. (2010). Cependant, l'anomalie positive tropicale présente en 2010 en Amérique du Sud tropicale semble en désaccord avec le probable impact négatif sur les flux de méthane imposé par la sécheresse subie par l'Amazonie en 2010 (Lewis et al., 2011). Nous revenons sur ce point important dans la section 6.5.3.

A partir du milieu de l'année 2011 et jusqu'au milieu de l'année 2012, on constate une persistance de fortes émissions de méthane à l'échelle globale (autour de 530 $\text{TgCH}_4.\text{an}^{-1}$) malgré un retour à des quantités de méthane émises dans les tropiques moins élevées. Cependant, une hausse des émissions se produit au début de l'année 2012, qui est très probablement attribuable aux émissions anthropiques en Asie avec une forte contribution de la Chine (augmentation de ≈ 10 TgCH_4) au cours de la même période (figure 6.11).

6.5.3 Evaluation des estimations obtenues par modélisation inverse avec les flux simulés par un modèle de végétation

L'évaluation directe des sources et puits de méthane estimés par modélisation inverse est difficile car les mesures directes des flux ne donnent des informations que sur des flux à des échelles locales (~ 1 km^2) mal représentées dans les inversions atmosphériques globales qui estiment les flux à l'échelle du modèle ($\sim 10^5$ km^2). Cependant, les estimations des flux de méthane par une approche montante (Section

1) peuvent être directement comparables avec les inversions atmosphériques. Ainsi, on compare dans cette section la variabilité des émissions estimées par modélisation inverse avec les émissions de méthane par les zones humides simulées par le modèle de végétation ORCHIDEE (Krinner et al., 2005). On part notamment du constat de Pison et al. (2013) qui, étudiant le rôle des émissions par les zones humides au cours des années 2000, ont estimé que la variabilité temporelle des émissions de méthane dans les années récentes est fortement expliquée par les émissions par les zones humides. Ainsi, une comparaison entre les 9 inversions présentées dans la section précédente et des simulations du modèle ORCHIDEE permet de tester la cohérence des estimations. Le modèle ORCHIDEE permet de représenter les divers processus menant à l'émission de méthane (diffusion, ébullition et transport par l'intermédiaire de plantes aquatiques) dans l'atmosphère par les zones humides. Ce modèle a été utilisé dans le passé, dans plusieurs études pour analyser les flux de méthane provenant des zones humides (Ringeval et al., 2010, 2011). Il a également participé à une intercomparaison de modèles globaux simulant les émissions de méthane par les zones humides : l'intercomparaison WETCHIMP (Melton et al., 2013; Wania et al., 2013). En pratique, le flux de méthane est obtenu dans chaque grille du modèle (résolution de $1^\circ \times 1^\circ$) en faisant le produit entre la densité du flux (en $\text{gCH}_4.\text{m}^{-2}.\text{s}^{-1}$) et la fraction de surface inondée (en m^2). La densité de flux est simulée par ORCHIDEE et la fraction de surface inondée peut provenir de produits basés sur des cartes de surface détaillant le type de couverture terrestre (par exemple, la carte de Kaplan décrit dans (Bergamaschi et al., 2007)) ou sur des données satellites dans les micro-ondes qui fournissent des informations directes sur le type de la surface terrestre (le premier jeu de données de ce type a été fourni par (Prigent et al., 2007)). Le grand avantage de ces produits basés sur des mesures satellites est de pouvoir mettre à jour les cartes de l'étendue des zones humides très régulièrement (une résolution mensuelle caractérise généralement ces produits). Cependant, ces produits peuvent être affectés par des erreurs liées aux incertitudes de la télédétection spatiale des zones humides dans des régions, comme les tropiques, où la végétation est dense et la couverture nuageuse est importante. Ici, on présente deux simulations d'ORCHIDEE, que l'on nommera ORC-1 et ORC-2, réalisées récemment par Shushi Peng au LSCE pour le projet GCP (Global Carbon Project, www.globalcarbonproject.org). ORC-1 utilise une ancienne version d'ORCHIDEE et la carte des zones inondées provenant des travaux de Schroeder et al. (2010), qui est basée sur une reconstruction à partir de données satellites de l'état des surfaces. ORC-2 utilise une nouvelle version d'ORCHIDEE dans laquelle certains paramètres impactant directement le flux de densité de CH_4 ont été ajustés grâce à des comparaisons avec des mesures de flux à trois sites selon la méthode présentée par Ringeval et al. (2011), et une mise à jour de la carte des zones inondées de Schroeder et al. (2010).

Les totaux des émissions de méthane par les zones humides (en $\text{TgCH}_4.\text{an}^{-1}$) simulés par ORC-1 et ORC-2 et relatifs à l'échelle globale, aux régions tropicales (TROP), à l'Amérique du Sud tropicale (AsTr), à l'Asie du Sud-Est (SEAs) et l'Afrique (Afr) sont présentés dans le tableau 6.7 entre 2006 et 2012. Tout d'abord, on remarque que les régions tropicales participent en moyenne pour $\sim 50\%$ et $\sim 80\%$ dans les émissions globales de méthane par les zones humides pour respectivement ORC-1 et ORC-2. En effet, les régions tropicales émettent 80.3 et 158.4 $\text{TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ des 165.3 et 199.3 $\text{TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ émis à l'échelle globale sur la période 2006-2012 pour respectivement ORC-1 et ORC-2. Cependant, il faut noter que ces chiffres mettent clairement en évidence de grandes différences entre ORC-1 et ORC-2 dans les bilans des émissions. L'intercomparaison de Melton et al. (2013) souligne les grandes incertitudes qui peuvent exister dans les estimations adoptant une approche montante. Ainsi, il n'est pas si surprenant d'obtenir de telles différences en sachant que la version du modèle

6. ESTIMATION DES SOURCES ET PUIITS DE MÉTHANE ENTRE 2006 ET 2012 : BILAN ET INFLUENCE DU TRANSPORT ATMOSPHÉRIQUE

		Global	TROP	ASTr	SEAs	Afr
2006	ORC-1	171.5	84.9	35.7	6.5	19.2
	ORC-2	209.1	166.3	93.2	24.1	21.9
2007	ORC-1	170.4	85.5	35.9	6.9	19.6
	ORC-2	207.2	166.7	91.6	25.1	20.1
2008	ORC-1	166.1	80.3	33.9	7.0	18.1
	ORC-2	196.8	156.9	87.4	24.5	19.0
2009	ORC-1	158.3	73.1	32.2	6.6	18.8
	ORC-2	189.0	149.2	84.8	25.8	19.0
2010	ORC-1	166.6	81.8	33.8	6.8	21.0
	ORC-2	198.3	158.2	87.0	28.0	19.7
2011	ORC-1	167.6	81.8	35.2	7.6	17.6
	ORC-2	201.9	161.0	89.0	26.7	19.6
2012	ORC-1	156.9	74.6	32.5	6.9	19.5
	ORC-2	192.5	150.4	85.7	27.3	18.6

TABLE 6.7: Bilan des émissions de méthane par les zones humides (en $\text{TgCH}_4.\text{an}^{-1}$) entre 2006 et 2012 à l'échelle globale, dans les tropiques (TROP), en Amérique du Sud tropicale (ASTr), en Asie du Sud-Est (SEAs) et en Afrique (Afr) simulées par ORC-1 et ORC-2.

et le produit utilisé pour représenter les zones humides ont été modifiés entre ORC-1 et ORC-2. Pour la suite, il n'est pas préjudiciable d'avoir des bilans si différents entre ORC-1 et ORC-2 puisque je vais principalement commenter la variabilité temporelle des anomalies des émissions, qui, comme on va le voir, est assez proche entre ORC-1 et ORC-2. Cependant, lorsque j'évoquerai des bilans d'émissions je ferai en priorité référence à ORC-2 car cette simulation utilise des versions plus récentes du modèle et des fichiers de forçage.

Les valeurs reportées dans le tableau témoignent de deux périodes caractérisées par des émissions élevées : la période 2006-2007 et 2010-2011. Les émissions globales moyennes en 2006-2007 sont de $208.2 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ et de $200.1 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ en 2010-2011 pour ORC-2. Pour comparaison, la moyenne des émissions sur les autres années est de $192.8 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-1}$. Cela est en grande cohérence avec les résultats des inversions de la section 6.5.

Pour faire ressortir plus nettement les anomalies des émissions, on présente les deux graphes de la figure 6.13 qui montrent la série temporelle de l'anomalie des flux par les zones humides à l'échelle globale (en haut) et en Amérique du Sud tropicale (en bas) en prenant la même période de référence que précédemment (juin 2009-juin 2011). ORC-1 et ORC-2 apparaissent respectivement en bleu et rouge et, la moyenne des 9 inversions est représentée en noir accompagnée d'une enveloppe en rouge-marron indiquant le maximum et le minimum des estimations. Le choix de l'Amérique du Sud tropicale est justifié par le fait que c'est une région importante pour le cycle du méthane qui est dominée par les émissions des zones inondées.

A l'échelle globale, il apparaît en effet que les deux approches (montante et descendante) reproduisent de façon cohérente les 2 anomalies positives de flux de méthane en 2006-2008 et 2010-2011. Cela laisse à penser que les émissions par les zones inondées permettent donc d'expliquer la majeure partie des fluctuations interannuelles sur la période 2006-2012. Dans ORCHIDEE, les anomalies atteignent $+5$ et $+10 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ pour respectivement ORC-1 et ORC-2 à la fin de l'année 2006, et l'anomalie est un peu moins marquée en 2010-2011. De plus, le phasage entre ORCHIDEE et les inversions

diffère significativement en 2010 avec un démarrage de l'anomalie plus précoce (mi-2009) dans ORCHIDEE que dans les inversions.

Le fait de trouver une cohérence, malgré quelques déphasages, entre les émissions estimées par modélisation inverse et les émissions des zones humides simulées par ORCHIDEE à l'échelle globale, nous conforte dans l'idée que les deux anomalies majeures sur la période 2006-2012 sont fortement dépendantes des émissions naturelles par les zones humides. De plus, la forte corrélation entre les anomalies issues des inversions atmosphériques, des simulations ORC-1 et ORC-2 et de l'occurrence des événements La Niña (voir figure 6.12) renforce aussi l'idée que les processus naturels expliquent une grande partie de ces anomalies en liaison avec des périodes plus humides dans certaines régions tropicales.

Aux échelles régionales, l'analyse des totaux des émissions dans les régions tropicales (tableau 6.7) fait également ressortir les deux mêmes périodes de fortes émissions (166.5 et 159.6 TgCH₄.an⁻¹ respectivement en 2006-2007 et 2010-2011 pour ORC-2). On retrouve ici le fait que les régions tropicales expliquent fortement la variabilité des émissions de méthane par les zones humides à l'échelle globale (Melton et al., 2013; Ringeval et al., 2014; Kirschke et al., 2013). En analysant trois régions tropicales (l'Amérique du Sud tropicale (ASTr), l'Asie du Sud-Est (SEAs) et l'Afrique (Afr)), on note que l'anomalie en 2006-2007 est principalement associée à une anomalie en Amérique du Sud avec des émissions moyennes de 92.4 TgCH₄.an⁻¹ au cours de ces deux années. En revanche, l'anomalie en 2010-2011 semble plutôt répartie entre l'Asie du Sud-Est (28.0 TgCH₄ émis en 2010) et l'Amérique du Sud (89.0 TgCH₄ émis en 2011). Dans ORC-1, l'anomalie de 2006-2007 est également plus marquée en Amérique du Sud tropicale, tandis que l'anomalie de 2010-2011 est aussi répartie entre Amérique du Sud tropicale et Asie du Sud-Est. La figure 6.13 (en bas) témoigne d'une bonne corrélation entre les émissions estimées par inversion et les émissions simulées par ORC-1. Pour ORC-2, l'anomalie de 2007 est également bien visible. Cependant, l'anomalie de 2010-2011 n'est pas bien en phase avec l'anomalie des inversions et une anomalie négative est simulée à la fin de l'année 2010 pour ORC-2 contrairement aux inversions.

Cette forte anomalie négative dans les émissions de méthane par les zones humides simulée par ORC-2 peut être reliée à la sécheresse sévère qui a touché l'Amazonie à partir du début de l'été austral 2010 (Marengo et al., 2011; Lewis et al., 2011). Comme on l'a rappelé précédemment, le flux de méthane est le produit de la densité de flux par la surface couverte par les zones humides. Or, ces conditions de fortes chaleurs et de sécheresse ont pu, d'une part, stimuler la densité de flux de méthane (fortes chaleurs) et, d'autre part, réduire considérablement l'étendue des zones humides (sécheresse). En effet, des travaux complémentaires de Shushi Peng (non montrés ici) ont mis en évidence une anomalie positive de la densité de flux simulée par ORC-2 en phase avec une anomalie positive des températures de l'air lors de cette sécheresse de 2010 en Amazonie. De même, une anomalie négative des précipitations mise en évidence dans trois jeux de données des précipitations globales (CRU (Mitchell and Jones, 2005), GPCP (Adler et al., 2003) et TRMM (Huffman et al., 2007)) a été trouvée en phase avec une anomalie négative de l'étendue des zones humides issue de Schroeder et al. (2010). Au final de ces anomalies, il n'est pas surprenant d'obtenir une anomalie négative des flux de méthane car Bloom et al. (2010) ont montré que la variabilité des précipitations explique une plus grande partie de la variabilité des émissions tropicales de CH₄ que la variabilité de la température. Cependant, les signaux d'une sécheresse impactant le climat de l'Amazonie et les émissions de méthane dans cette région sont beaucoup moins évidents dans ORC-1 et dans les inversions. Il se peut que les ajustements apportés à la version ORC-2 ont rendu cette dernière version plus sensible aux conditions

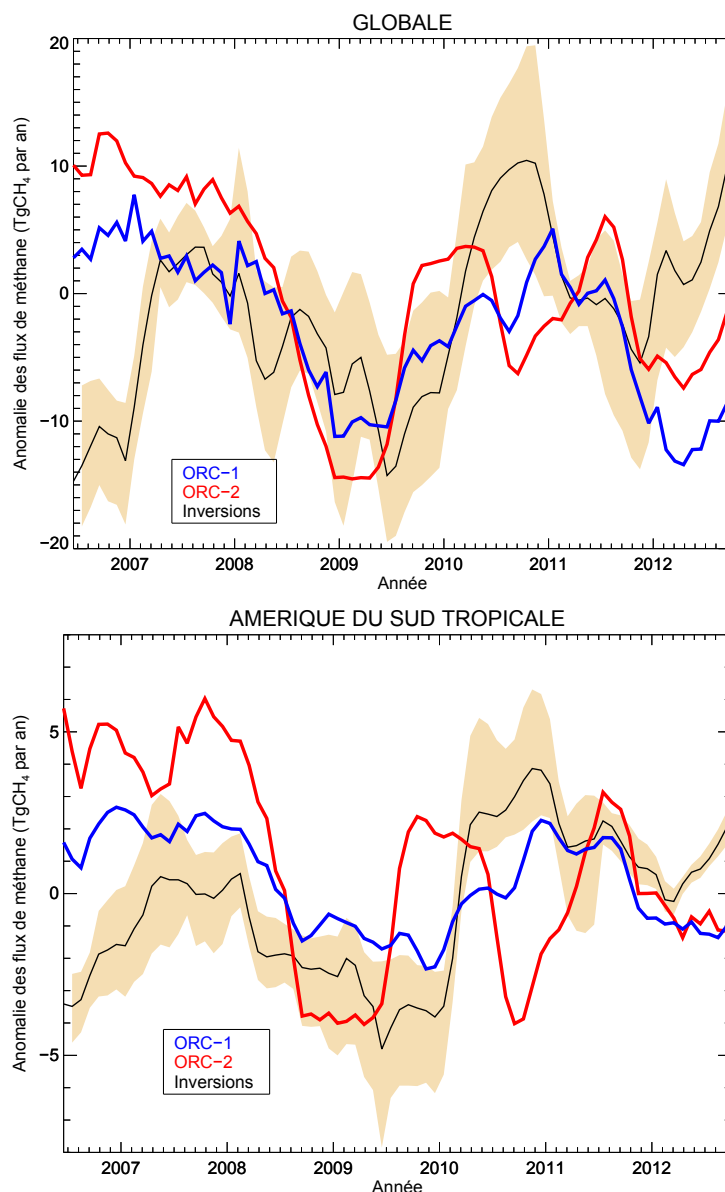


FIGURE 6.13: Anomalie des émissions de CH₄ par les zones humides simulées par deux versions du modèle ORCHIDEE utilisant deux versions différentes du produit de [Schroeder et al. \(2010\)](#) relatif à l'étendue des zones humides à l'échelle globale (en haut) et en Amérique du Sud tropicale (en bas). Les anomalies issues des inversions sont superposées (courbe noire accompagnée de la fourchette des inversions en rouge-marron).

de sécheresse. En ce qui concerne les inversions, à part un léger ralentissement de l'augmentation des émissions au milieu de l'année 2010, il semble assez clair qu'aucune anomalie négative puisse être liée à la sécheresse de 2010. Il faut tout de même rappeler que les émissions estimées par ORCHIDEE témoignent seulement des émissions par les zones humides. D'autres émissions ne provenant pas des zones humides, comme le méthane émis lors de feux de biomasse, pourraient expliquer une partie du désaccord entre les inversions et ORC-2. Des travaux complémentaires seraient utiles pour éclaircir cette situation complexe dans les régions tropicales où des conditions La Niña favorisant les émissions de méthane dans le Pacifique sont en opposition avec des

conditions chaudes et sèches en Amazonie limitant les émissions par les zones humides.

Au total, cette évaluation confirme par une méthode indépendante que la contribution des régions tropicales à l'anomalie de 2007 provient essentiellement de l'Amérique du Sud tropicale. La situation moins claire en 2010-2011 conforte également l'idée qu'une autre région participe probablement à l'anomalie tropicale. C'est ce qu'on a montré avec la série temporelle de l'anomalie des flux en Asie du Sud-Est sur la figure 6.11. Finalement, on retrouve dans cette comparaison que plusieurs résultats sont partagés à la fois par les inversions et par les simulations de ORCHIDEE, malgré de forts désaccords dans le phasage des anomalies à l'échelle régionale.

Pour la suite, il est également important de signaler que l'amplitude des anomalies et l'impact de la sécheresse de 2010 en Amazonie diffèrent entre les deux approches. En effet, il ne fait aucun doute dans les estimations du modèle ORCHIDEE que l'anomalie en 2006-2007 est plus marquée que l'anomalie de 2010-2011 ($8.1 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ supérieure). Dans le cas des inversions atmosphériques, on obtient un résultat contradictoire puisque l'anomalie de 2010-2011 est plus marquée que celle de 2007 ($\sim 5 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ supérieure). Cependant, on peut faire remarquer que les inversions satellites n'étaient pas disponibles en 2006-2007 puisque les données satellites GOSAT ont commencé à être disponibles au milieu de l'année 2009. Par conséquent, l'anomalie détectée seulement par des inversions de surface en 2007 est probablement sous-estimée, étant donné qu'on a vu que les inversions satellites trouvaient des anomalies plus fortes que les inversions de surface dans les tropiques.

6.6 Tendance dans les émissions de méthane entre 2006 et 2012

Une question importante, beaucoup discutée dans la littérature, est celle de la tendance à long terme des émissions de méthane depuis 2000. Dans la section 6.2, il a été montré que l'inventaire EDGAR version 4.2FT2010 surestimait probablement les émissions en Chine en 2010. Bergamaschi et al. (2013) ont trouvé un résultat similaire en montrant que la tendance des émissions durant les années 2000 issue de EDGAR version 4.2 surestimait la tendance retrouvée par des inversions atmosphériques. Kirschke et al. (2013) évoquent également une potentielle surestimation des émissions anthropiques en Asie mais les grandes incertitudes associées à leur étude ne permettent pas de conclure totalement sur la question.

On présente alors dans le tableau 6.8 les tendances (en $\text{TgCH}_4.\text{an}^{-2}$) des émissions trouvées dans les 9 inversions, le prior, l'inventaire EDGAR, l'inventaire EPA et les simulations ORC-1 et ORC-2 d'ORCHIDEE. Ces tendances ont été calculées à partir d'un ajustement linéaire des émissions selon la procédure de Thoning et al. (1989). On présente les résultats pour l'échelle globale, les trois régions définies en bandes de latitude (les tropiques, les régions extra-tropicales de l'hémisphère nord et de l'hémisphère sud) et quelques régions continentales importantes déjà notées dans les sections précédentes.

Je suis conscient que 7 ans correspond à une durée un peu courte pour assurer la robustesse des tendances présentées. Mais je propose l'analyse ci-dessous car elle éclaire tout de même en partie les questions qui se posent sur l'évolution des émissions de méthane depuis 2006.

6. ESTIMATION DES SOURCES ET PUIITS DE MÉTHANE ENTRE 2006 ET 2012 : BILAN ET INFLUENCE DU TRANSPORT ATMOSPHERIQUE

Régions	Inversions	PRIOR	EDGAR v4.2FT2010	EPA	ORCHIDEE ORC-1 ; ORC-2
Global	+1.4 [+1.3 ; +1.6]	+4.4	+5.1	+3.6	-1.6 ; -2.1
EX-HN	-0.4 [-1.9 ; 0.0]	+2.3	+3.2	-	-1.0 ; -0.1
EX-HS	-0.1 [-0.1 ; 0.0]	-0.1	0.0	-	-0.1 ; -0.1
TROP	+1.9 [+1.4 ; +3.3]	+2.2	+2.1	-	-0.4 ; -0.7
ANB	-0.1 [-0.2 ; 0.0]	+0.1	0.0	-	+0.3 ; +0.2
ANT	-0.3 [-0.6 ; -0.2]	-0.2	-0.1	-	0.0 ; 0.0
ASTr	+0.6 [+0.4 ; +0.8]	+0.7	-0.2	-	-0.4 ; -0.9
ASTm	+0.15 [-0.1 ; 0.3]	+0.3	-0.3	-	-1.0 ; -1.1
Afr	0.0 [-0.2 ; +0.2]	+0.2	+1.5	+1.1	0.0 ; -0.3
EurB	-0.1 [-0.3 ; 0.0]	+0.2	+0.3	-	-0.4 ; -0.2
SEAs	+0.2 [-0.3 ; +1.0]	-0.2	-0.1	-	+0.1 ; +0.6
Eur	-0.6 [-1.0 ; -0.09]	+0.2	+0.1	+0.3	+0.1 ; +0.1
Chi	+0.9 [0.0 ; +2.0]	+2.3	+3.0	+0.4	-0.2 ; -0.3
Ind	+0.2 [+0.1 ; +0.5]	+0.3	+0.3	+0.3	-0.1 ; -0.1
ME	+0.3 [+0.2 ; +0.4]	+0.4	+0.7	+0.3	0.0 ; 0.0

TABLE 6.8: Tendances des émissions de méthane entre 2006 et 2012 exprimées en TgCH_4 par an^2 pour différentes régions. Les tendances calculées à partir des 9 inversions (on donne la moyenne, et le minimum et le maximum entre crochets des tendances des différentes inversions), de l'information *a priori*, de l'inventaire EDGAR v4.2FT2010, de l'inventaire EPA et de 2 simulations du modèle de végétation ORCHIDEE sont exposées dans les différentes colonnes.

La tendance trouvée à l'échelle globale dans les inversions atmosphériques est de $+1.4 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-2}$. Cette tendance est principalement pilotée par une forte tendance positive de $+1.9 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-2}$ dans les tropiques et une tendance négative de $-0.4 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-2}$ dans les régions extra-tropicales de l'hémisphère nord (HN). La tendance trouvée dans les émissions *a priori* à l'échelle globale est très supérieure ($+4.4 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-2}$) ce qui est expliqué en partie par la forte tendance positive ($+2.3 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-2}$) dans les régions extra-tropicales de HN (Chine). Cependant, ces tendances sont biaisées par le fait que les émissions naturelles par les zones humides utilisées dans notre scénario *a priori* ne possèdent pas de variabilité interannuelle. Par conséquent, les tendances trouvées dans le prior sont proches de celles trouvées dans l'inventaire EDGAR version 4.2FT2010, avec une forte tendance positive ($+5.1$

$\text{TgCH}_4.\text{an}^{-2}$) à l'échelle globale principalement associée à la tendance en Chine : $+3.0 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-2}$. A contrario, les inversions atmosphériques trouvent une tendance plus faible de $+0.9 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-2}$ en Chine, même si cette tendance est la plus élevée des différentes régions étudiées. On confirme alors le résultat de diverses études (Bergamaschi et al., 2013; Houweling et al., 2014; Bruhwiler et al., 2014) qui montrent que les tendances des émissions anthropiques dans l'inventaire EDGAR version 4.2FT2010 sont trop fortes. Ces valeurs positives restent trop fortes même si on prend en compte les tendances négatives trouvées par ORCHIDEE à l'échelle globale (-1.6 et $-2.1 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-2}$ pour ORC1 et ORC-2).

Il est également intéressant de remarquer que la tendance des émissions inversées en Amérique du Nord tempérée est négative ($-0.3 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-2}$). En effet, plusieurs études (Howarth et al., 2011; Karion et al., 2013; Kort et al., 2014), basées sur des mesures atmosphériques, font état d'émissions de méthane importantes liées à l'extraction du gaz de schiste aux Etats-Unis (voir Section 2.2.2), même si d'autres études ne sont pas en accord avec ces résultats (Cathles III et al., 2012; Wecht et al., 2014). On pourrait alors penser à trouver une tendance positive dans cette région en estimant que les activités liées à cette industrie ont augmenté significativement ces 10 dernières années. Cependant, notre zone d'étude couvre la période 2006-2012, or l'exploitation du gaz de schiste aux Etats-Unis a commencé au début des années 2000. Ainsi, il se peut que les taux d'émission de méthane soient restés plus ou moins constants à la fin des années 2000, et qu'on ne trouve pas, en conséquence, de tendance positive dans les émissions en n'étudiant que la période 2006-2012. Kort et al. (2014) ont fait un constat proche de celui-là : ils ont constaté une grande anomalie dans la région des « Four Corners » dans le Sud-Ouest des Etats-Unis qui a persisté avec la même intensité entre 2003 et 2009. A noter également que la tendance des émissions en Europe, qui sont principalement d'origine anthropiques, est négative ($-0.6 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-2}$) entre 2006 et 2012. Enfin, les régions des hautes latitudes de l'hémisphère nord ne montrent pas de tendances significatives sur les années récentes ce qui indique l'absence, vue de l'atmosphère, d'une forte augmentation des émissions par le pergélisol ou les hydrates de méthane par exemple (section 2.2.2).

Enfin, les régions des hautes latitudes de l'hémisphère nord ne montrent pas de tendances significatives sur les années récentes ce qui indique l'absence, vue de l'atmosphère, d'une forte augmentation des émissions par le pergélisol ou les hydrates de méthane par exemple.

Dans les régions tropicales, les inversions trouvent une tendance positive de $+1.9 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-2}$. L'Amérique du Sud tropicale et l'Asie du Sud-Est contribuent à cette tendance avec respectivement une tendance de $+0.6$ et $+0.2 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-2}$. Ces régions sont fortement impactées par les émissions par les zones humides, c'est pourquoi il est légitime de comparer ces tendances à celles trouvées dans les simulations du modèle ORCHIDEE. Les tendances dans les tropiques issues de ORC-1 et ORC-2 sont respectivement de -0.4 et $-0.7 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-2}$, ce qui est en opposition totale avec la tendance trouvée dans les inversions atmosphériques. Il faut tout de même signaler que les tendances provenant des inversions atmosphériques peuvent être impactées par les tendances d'autres types d'émissions (émissions anthropiques par exemple). Cependant, il semble assez clair ici que les tendances provenant de ORC-1 et ORC-2 sont en opposition avec les tendances issues des inversions atmosphériques. Les tendances dans les tropiques sur la période 2006-2012 sont principalement expliquées par l'amplitude des deux anomalies évoquées dans la section précédente. Or, on a fait remarquer que ces anomalies ont des amplitudes différentes selon l'approche utilisée :

- l'approche montante (simulations ORC-1 et ORC-2) simule l'anomalie de 2006-2007 plus forte que celle de 2010-2011 et induit en conséquence une tendance négative dans les tropiques.

- l'approche descendante (inversions) dérive une anomalie en 2007 plus faible qu'en 2010-2011 et induit, au contraire, une tendance positive dans les tropiques.

Une investigation approfondie des tendances simulées par ORCHIDEE à partir des travaux de Shushi Peng (communication personnelle) ont permis de montrer que la tendance négative entre 2006 et 2012 était principalement pilotée par la tendance négative trouvée dans l'étendue des zones humides issue du produit de [Schroeder et al. \(2010\)](#). Cependant, il semble que cette tendance ne soit pas très réaliste car une tendance positive est trouvée dans la quantité de précipitations observées entre 2006 et 2012 dans les régions tropicales. Or, la tendance de l'étendue des zones humides est fortement corrélée aux quantités de précipitations ([Bloom et al., 2010](#)). De plus, le résultat portant sur la tendance des précipitations semble assez cohérent car il a été trouvé à partir de 3 jeux de données différents des précipitations mondiales (CRU ([Mitchell and Jones, 2005](#)); GPCP ([Adler et al., 2003](#)) et TRMM ([Huffman et al., 2007](#))). Les explications les plus plausibles pour expliquer ce désaccord sur les tendances semblent liées aux incertitudes accompagnant la détection des zones humides par satellite : la végétation dense et la couverture nuageuse importante dans les régions tropicales, où une majorité des zones humides est localisée, peuvent impacter les mesures par satellite. De plus, on peut également envisager une dégradation du capteur du satellite au cours de cette période.

Finalement, plusieurs indices (tendances positives dans les inversions et dans les précipitations) semblent indiquer une tendance positive des émissions de méthane dans les régions tropicales. Il semble tout de même raisonnable d'attendre d'avoir des séries plus longues pour pouvoir tirer des conclusions plus définitives sur le signe des tendances à long terme dans ces régions où les anomalies perdurent plusieurs années.

En bilan, les inversions atmosphériques menées dans cette thèse permettent de fournir une estimation de la partition des tendances 2006-2012. En effet, la tendance globale des émissions de méthane ($+1.4 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-2}$) est essentiellement expliquée par la tendance estimée en Asie (Chine et Asie du Sud-Est, émissions essentiellement anthropiques) avec $+1.1 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-2}$ et celle de l'Amérique du Sud tropicale (émissions essentiellement naturelles) avec $+0.6 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-2}$. Du même coup, nous confirmons aussi d'autres études récentes, selon laquelle les émissions anthropiques de l'inventaire EDGAR version 4.2FT2010 sont surestimées en Asie. Au contraire, on ne peut pas conclure définitivement sur la tendance des émissions dans les tropiques, même si une tendance positive semble la plus probable au vu de nos différents résultats. La tendance des émissions dans les tropiques impactant fortement la tendance à l'échelle globale, il est également probable que la tendance des émissions de méthane soit positive à l'échelle globale entre 2006 et 2012, même si des études complémentaires sont nécessaires pour complètement confirmer cela.

6.7 Evaluation des inversions atmosphériques

Nous poursuivons l'évaluation des inversions atmosphériques, amorcée dans la section 6.5.3 par la comparaison avec des simulations du modèle ORCHIDEE, en utilisant des mesures indépendantes de la concentration atmosphérique de méthane. En effet, dans cette section, on présente l'évaluation des 9 inversions à partir de comparaisons avec :

- des mesures de concentration de méthane à la surface (6.7.1)

- des mesures du profil vertical de la concentration de méthane en Amazonie (6.7.2).

Ces mesures sont considérées soit comme « indépendantes » dans le cas où elles n'ont pas été utilisées comme contraintes atmosphériques dans le processus inverse, soit comme indicateur de référence de la qualité de l'ajustement des inversions dans le cas où elles sont assimilées.

6.7.1 Evaluation grâce à des mesures de surface

Les tableaux 6.9 et 6.10 présentent respectivement le biais et l'erreur quadratique moyenne (RMSE) à différentes stations de surface dans le cas des 9 inversions. Trois panels de stations sont étudiés. Le premier est constitué de stations dont les mesures de concentration de méthane ont été assimilées dans les inversions BG et EXT. Ces stations forment un jeu de stations indépendantes seulement pour les inversions satellites. Le deuxième jeu de données est constitué de stations qui ont été assimilées dans les inversions EXT seulement. Ces stations forment un jeu de stations indépendantes pour les inversions BG et satellites. Enfin, le troisième panel est constitué de stations assimilées dans aucune des inversions, et forment donc des mesures indépendantes pour l'ensemble des inversions. Lorsque les mesures à une station ont été assimilées dans une inversion, les statistiques des tableaux 6.9 et 6.10 sont notées en rouge.

De manière générale, on trouve des statistiques assez proches, liées aux caractéristiques des stations (stations côtières, stations continentales, stations d'altitude, etc.), entre les différentes inversions. Les valeurs des RMSE sont plus importantes aux stations impactées par de fortes émissions de méthane. Par exemple, la RMSE atteint 107.8 ppb à KMW (Kollumerwaard, Pays-bas) pour EXT-NP. A BKT (Bukit Kota Tabang, Indonésie), située dans une région où les émissions biogéniques par les zones humides sont importantes, les RMSE sont comprises entre 51.5 et 91.7 ppb selon les inversions. Au contraire, les valeurs de RMSE et de biais sont faibles aux stations échantillonnant la concentration de fond de méthane. C'est le cas, par exemple, à SPO (Pôle Sud) ou à CGO (Cape Grim, Australie) où les RMSE sont respectivement comprises entre 1.2 et 6.1 ppb et entre 2.0 et 10.1 ppb. Il est aussi important de remarquer que les résultats obtenus avec des inversions utilisant LMDz-NP peuvent être légèrement dégradés pour certaines stations comparés aux résultats des inversions utilisant LMDz-SP et LMDz-TD (exemple : les stations RPB, WLG et NGL). En effet, l'aptitude de la version LMDz-NP à simuler une plus grande variabilité (Locatelli et al., 2014) engendre, en conséquence, une plus grande variabilité dans les concentrations *a posteriori* et des scores statistiques légèrement dégradés. C'est notamment le cas lorsque les flux *a priori* ou les réanalyses météorologiques sont peu précis. Cependant, ce constat n'implique pas pour autant qu'il faut accorder moins de confiance dans les estimations par modélisation inverse basées sur LMDz-NP puisque les raisons qui font que les statistiques sont meilleures pour LMDz-TD ne sont pas les bonnes (surestimation du mélange dans la couche limite, surestimation des échanges inter-hémisphériques, etc.). Néanmoins, ces résultats indiquent que l'utilisation de la version LMDz-NP demande une attention plus importante concernant les stations assimilées et les incertitudes qui leur sont associées. La comparaison des statistiques aux stations de surface assimilées montre que les résultats sont légèrement dégradés dans les inversions utilisant le réseau EXT comparé au réseau BG. En effet, on peut supposer que le fait de rajouter des stations dans le réseau EXT, qui sont plus difficiles à représenter par un modèle global car plus proches des zones d'émissions, peut mener à une dégradation de la cohérence à certaines stations. Cependant, l'ajout de stations permet d'améliorer les statistiques dans d'autres zones

6. ESTIMATION DES SOURCES ET PUIXS DE MÉTHANE ENTRE 2006 ET 2012 : BILAN ET INFLUENCE DU TRANSPORT ATMOSPHÉRIQUE

Stations	lon ;lat	BG			EXT			PR-LEI		
		TD	SP	NP	TD	SP	NP	TD	SP	NP
WSA	-60° ;45°	3.3	4.2	3.3	3.1	0.9	4.3	1.0	9.2	9.4
PUY	4° ;46°	-3.6	-1.0	-5.6	-3.9	-4.5	-4.2	-2.6	3.6	-1.3
LLN	120° ;24°	15.1	22.3	25.1	16.5	22.3	26.8	8.5	14.1	25.3
LLB	-113° ;56°	-7.1	-7.3	32.1	-5.6	-12.7	14.3	-8.5	-2.2	44.1
KMW	8° ;54°	-39.4	-28.3	-10.8	-37.3	-32.7	-8.0	-49.6	-40.4	-3.5
HPB	11° ;48°	-5.1	1.1	-10.3	-4.6	-3.8	-10.3	-0.8	11.3	6.3
EGB	-79° ;45°	36.1	34.4	67.5	30.3	28.5	64.9	33.3	41.6	73.2
BKT	101° ;-1°	49.4	58.9	45.6	50.8	62.6	46.7	41.3	38.5	44.5
BAL	19° ;56°	6.8	12.9	9.8	7.4	7.1	10.0	24.4	35.9	33.8
AMY	128° ;37°	69.0	66.4	53.0	34.0	55.9	49.7	44.6	53.4	42.5
CFA	146° ;-20°	1.5	3.1	1.2	1.1	5.0	0.1	-1.1	-3.3	-0.3
COI	146° ;43°	14.5	12.4	5.5	-1.2	5.2	3.3	9.3	19.1	15.2
GSN	128° ;33°	61.6	57.3	46.9	20.9	46.0	41.0	44.7	51.5	48.2
FSD	-83° ;50°	13.0	14.1	9.7	-1.0	5.9	4.4	10.4	19.6	15.9
MNM	154° ;24°	8.1	7.7	6.5	7.7	6.5	8.6	-1.9	1.6	4.8
NGL	11° ;54°	10.0	17.6	9.2	3.4	10.6	2.4	26.7	38.7	32.1
YON	124° ;24°	13.1	13.8	13.3	1.1	10.2	12.3	1.4	6.8	10.2
MEX	-98° ;20°	-3.3	-6.4	-9.7	-1.2	-5.5	-7.6	-7.1	-9.2	-6.3
PAL	23° ;68°	3.1	6.9	0.1	1.5	0.8	0.5	7.5	17.6	11.5
PTA	-124° ;39°	1.8	2.8	4.7	1.6	0.5	5.6	0.5	6.4	12.0
ALT	-64° ;82°	-1.3	-1.1	-2.0	-3.4	-3.5	-2.8	-1.8	5.6	5.6
AZR	-26° ;39°	-9.3	-9.5	-11.6	-9.0	-12.4	-11.3	-7.2	-1.1	-1.5
CGO	146° ;-41°	-0.3	1.5	1.2	0.9	1.6	-0.2	0.3	-3.8	4.1
CPT	18° ;-35°	-0.8	-0.8	-1.7	-2.6	1.0	-1.8	-0.8	-4.6	0.5
GMI	146° ;14°	8.1	6.3	4.3	9.7	6.5	6.9	3.4	2.5	5.6
MLO	-153° ;20°	4.0	2.6	0.2	6.0	1.1	0.2	-0.3	-1.9	0.7
RPB	-60° ;12°	-2.6	-7.4	-9.7	-2.3	-7.9	-8.4	-8.0	-8.6	-5.2
SEY	56° ;-5°	-1.0	-0.8	-2.4	0.3	0.8	-1.5	-3.6	-5.0	1.1
SMO	-169° ;-14°	-1.9	-0.8	-2.2	-2.8	0.1	-2.0	-5.3	-6.3	-2.5
SPO	-26° ;-90°	-1.1	-1.0	-2.0	1.2	1.4	-0.3	-1.6	-5.3	-0.5
WLG	101° ;37°	1.6	9.0	8.3	14.5	8.2	16.2	4.3	9.3	1.5
ZEP	11° ;79°	2.2	4.4	1.7	2.2	0.4	3.6	2.7	12.5	12.0

TABLE 6.9: Biais (en ppb) entre les concentrations simulées, qui utilisent les flux optimisés par les 9 différentes inversions, et les concentrations mesurées à diverses stations de surface assimilées (en rouge) et non-assimilées (en noir).

géographiques non contraintes par le réseau BG. C'est le cas par exemple au Canada et à l'est de l'Asie tempérée, où de nombreuses stations ont été ajoutées dans le réseau EXT. On remarque par exemple que les RMSE sont plus faibles aux stations LLB et EGB (exemple : les stations de Lac La Biche et Egbert situées au Canada) dans les inversions contraintes par le réseau EXT que par le réseau BG. On observe un résultat similaire à AMY (Anmyeon-do, Corée du Sud). En effet, dans le réseau EXT, 6 stations ont été ajoutées dans une zone géographique proche de la Corée du Sud et permettent alors de mieux optimiser les flux de cette région. Les biais et les RMSE à AMY sont meilleurs pour les inversions utilisant les données du réseau EXT en comparaison avec les inversions assimilant les données du réseau BG. On illustre ici le fait que l'apport de contraintes supplémentaires permet d'améliorer la cohérence à des stations de mesures non assimilées, mais que cela peut être au détriment de la convergence à certaines autres stations.

De plus, les statistiques présentent en général de meilleurs résultats aux stations tropicales (LLN, YON, RPB, MNM, CFA, GMI et SMO) pour les inversions basées sur des

Stations	lon ;lat	BG			EXT			PR-LEI		
		TD	SP	NP	TD	SP	NP	TD	SP	NP
WSA	-60° ;45°	14.9	16.7	15.7	14.5	15.3	15.1	15.5	20.9	17.4
PUY	4° ;46°	15.5	16.1	16.6	14.9	16.1	14.9	18.7	21.1	20.4
LLN	120° ;24°	26.1	34.9	39.6	28.5	34.6	40.6	20.6	25.7	36.7
LLB	-113° ;56°	52.5	51.8	75.4	42.8	48.3	58.9	50.4	49.5	82.5
KMW	8° ;54°	89.3	82.2	92.3	84.1	84.3	107.8	83.3	76.3	99.0
HPB	11° ;48°	25.0	24.3	33.0	23.5	23.9	31.0	27.7	33.7	45.0
EGB	-79° ;45°	45.3	44.2	44.6	40.1	38.5		43.6	52.2	111.4
BKT	101° ;-1°	79.6	71.5	63.3	82.9	91.7	64.5	56.0	53.3	51.5
BAL	19° ;56°	22.8	25.2	28.9	21.1	22.1	27.6	40.6	50.9	51.2
AMY	128° ;37°	90.5	85.3	93.5	56.2	74.5	86.5	62.4	69.8	77.7
CFA	146° ;-20°	8.0	8.8	12.7	6.0	9.3	9.1	5.0	6.0	7.4
COI	146° ;43°	29.4	27.5	24.0	13.7	20.6	15.7	23.7	31.9	25.7
GSN	128° ;33°	77.4	75.0	63.3	37.8	61.7	53.1	58.4	64.8	61.9
FSD	-83° ;50°	25.3	26.5	22.4	10.5	17.9	14.1	23.8	29.9	24.1
MNM	154° ;24°	16.2	17.5	16.9	14.3	16.1	16.4	11.5	12.2	13.8
NGL	11° ;54°	29.8	30.7	39.6	19.3	26.4	29.2	41.5	51.9	60.2
YON	124° ;24°	30.5	30.9	33.0	18.6	26.3	26.4	23.3	25.2	32.1
MEX	-98° ;20°	9.9	11.7	14.4	9.6	11.1	13.0	10.9	12.6	11.7
PAL	23° ;68°	15.8	18.8	18.8	11.4	14.8	14.5	27.8	32.3	29.3
PTA	-124° ;39°	16.2	16.9	23.9	13.0	16.2	20.1	14.6	15.6	26.8
ALT	-64° ;82°	5.9	7.8	8.1	7.5	10.7	9.0	10.7	14.0	15.7
AZR	-26° ;39°	18.8	19.2	22.0	19.0	20.6	21.6	20.1	17.9	18.0
CGO	146° ;-41°	3.0	4.7	6.4	6.0	5.5	2.0	3.1	5.2	10.1
CPT	18° ;-35°	5.9	5.9	6.3	4.5	6.1	5.3	6.2	7.7	6.8
GMI	146° ;14°	16.3	17.7	16.3	17.3	17.6	17.4	15.3	15.4	16.2
MLO	-153° ;20°	9.9	9.8	9.7	12.3	10.2	9.9	9.0	10.7	11.2
RPB	-60° ;12°	9.2	12.2	15.1	9.6	12.8	14.5	12.6	13.7	13.7
SEY	56° ;-5°	11.9	11.4	16.7	12.4	12.0	16.9	11.9	11.7	11.2
SMO	-169° ;-14°	4.8	3.8	5.6	6.1	3.9	5.4	6.9	7.7	5.5
SPO	-26° ;-90°	2.6	2.5	3.2	2.3	2.2	1.2	2.8	6.1	2.9
WLG	101° ;37°	21.3	30.8	31.8	30.0	33.3	39.2	26.3	34.1	29.3
ZEP	11° ;79°	8.0	11.6	11.2	8.3	10.3	12.0	13.5	21.2	22.4

TABLE 6.10: Racine carrée de l'erreur quadratique moyenne (RMSE en anglais), exprimée en ppb, entre les concentrations simulées, qui utilisent les flux optimisés par les 9 différentes inversions, et les concentrations mesurées à diverses stations de surface assimilées (en rouge) et non-assimilées (en noir).

données satellites (PR-LEI). Par exemple, à LLN (Lulin, Chine), dont les mesures ne sont assimilées dans aucune des inversions, le biais passe de 15.1 à 8.5 ppb et la RMSE passe de 26.1 à 20.6 ppb entre la version BG-TD et PR-LEI-TD. Des résultats similaires sont trouvés pour les autres versions du système inverse et aux autres stations tropicales. En effet, les régions tropicales sont beaucoup mieux contraintes dans les inversions satellites où la densité d'observations est nettement supérieure à ce qui est utilisé dans les inversions de surface. On note également que certaines stations, qui sont pourtant assimilées dans des inversions de surface, présentent de meilleures statistiques lorsque le flux optimisé par les inversions satellites est utilisé. C'est le cas, par exemple à CFA (Cape Ferguson, Australie) et MNM (Minamitorishima, Japon) où les RMSE sont plus faibles dans PR-LEI que dans EXT.

6.7.2 Evaluation grâce à des profils verticaux mesurés durant les campagnes « BARCA »

Il a été mis en évidence plusieurs fois dans la section 6.5 que l'Amazonie contribue fortement au budget mondial de méthane. En particulier, le bassin de l'Amazonie représente une source naturelle importante de méthane par les émissions microbiennes dans les milieux anoxiques comme les zones humides. Melack et al. (2004) ont estimé les émissions dues aux zones humides dans le bassin de l'Amazonie à $29.3 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-1}$. D'autres sources de méthane peuvent également émettre de grandes quantités de méthane, c'est le cas par exemple des émissions dues à la combustion de la biomasse. Kirschke et al. (2013) trouvent un bilan de $45.3 [37.2-62.6] \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ pour les inversions atmosphériques et de $79.3 [51.0-122.4] \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ pour les modèles de végétation sur l'ensemble de l'Amérique du Sud tropicale, qui comprend le bassin de l'Amazonie. Pour mieux quantifier les émissions des gaz à effet de serre, et notamment du méthane, de cette région, deux campagnes de mesures au sein du projet Balanço Atmosférico Regional de Carbono na Amazônia (BARCA) ont été mises en place (Beck et al., 2012, 2013). La première campagne, BARCA-A, a eu lieu en novembre 2008 à la fin de la saison sèche, tandis que la seconde campagne, BARCA-B, s'est déroulée en mai 2009 à la fin de la saison humide.

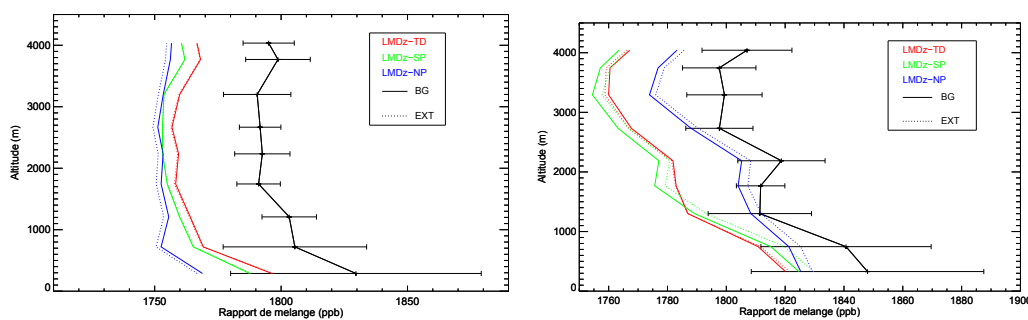


FIGURE 6.14: Comparaison des profils verticaux simulés par trois versions de LMDz (LMDz-TD (rouge) ; LMDz-SP (vert) ; LMDz-NP (bleu)) avec les profils mesurés lors des campagnes BARCA-A (à gauche) et BARCA-B (à droite). Les champs de flux de méthane utilisés au cours de ces simulations proviennent des flux optimisés dans les configurations BG et EXT des réseaux de surface.

On utilise les données récoltées au cours de ces deux campagnes de mesures pour valider les inversions de surface seulement car la période d'étude des inversions satellites ne couvre pas les deux mois de mesures fournies par BARCA.

La figure 6.14 présente la comparaison des profils verticaux simulés lorsqu'on utilise les flux optimisés par les inversions de surface avec les profils mesurés au cours des campagnes BARCA-A (à gauche) et BARCA-B (à droite). Les simulations réalisées grâce aux trois versions de LMDz (LMDz-TD (rouge) ; LMDz-SP (vert) ; LMDz-NP (bleu)) sont représentées sur cette figure. On distingue aussi les simulations utilisant le flux provenant des inversions contraintes par le réseau BG (traits pleins) et par le réseau EXT (traits pointillés).

D'une manière générale, les résultats confirment les conclusions de l'étude de Beck et al. (2012) qui affirment que l'utilisation de contraintes à la surface dans les inversions atmosphériques mène à une sous-estimation des concentrations optimisées. En effet, il apparaît ici que les profils simulés par les 3 versions de LMDz sous-estiment les

profils observés. Dans BARCA-A, la moyenne des profils simulés est de 1761 ppb, tandis que la moyenne des profils mesurés est 1800 ppb. Dans BARCA-B, la concentration moyenne de méthane mesurée dans les 4 premiers kilomètres de la troposphère est de 1815 ppb, alors que les simulations modélisent une concentration de 1788 ppb pour la même zone atmosphérique.

Au-delà des valeurs absolues, on peut comparer les gradients verticaux entre la couche limite et la troposphère libre. La troposphère libre est ici définie comme la zone atmosphérique au-dessus de 1500 mètres. Dans le cas de BARCA-A (profils de droite sur la figure 6.14), le gradient vertical observé n'est pas très marqué (voir Tableau 6.11) puisque le gradient entre les concentrations de la couche limite et de la troposphère libre n'est « que » de 20 ppb.

	BG			EXT			OBSERVATION
	TD	SP	NP	TD	SP	NP	
Couche limite	1777	1771	1759	1776	1771	1757	1813
Troposphère Libre	1762	1756	1754	1761	1756	1752	1793
Gradient	15	15	5	15	15	5	20

TABLE 6.11: Concentrations de méthane (en ppb) dans la couche limite et la troposphère libre simulées par les différentes versions de LMDz utilisant les flux optimisés des inversions de surface (BG et EXT) et observées au cours de la campagne de mesure BARCA-A en novembre 2008. Les gradients verticaux (en ppb) entre la couche limite et la troposphère libre sont également comparés.

Ce gradient est assez bien reproduit par LMDz-TD et LMDz-SP, tandis que LMDz-NP sous-estime ce gradient à cause notamment d'une sous-estimation des concentrations de surface. Dans le cas de BARCA-B, le gradient observé entre la couche limite et la troposphère libre est plus important que dans BARCA-A, en réponse aux fortes émissions par les zones humides à la fin de la saison humide, et atteint 38 ppb (voir Tableau 6.12). Les profils verticaux simulés par LMDz-NP sont en plus grand accord que ceux simulés par LMDz-SP et LMDz-TD, qui sous-estiment fortement les concentrations entre 1500 et 4000 mètres. Ce résultat est cohérent avec le fort impact du modèle des thermiques sur le transport vertical du méthane trouvé dans la section 6.4, dans les régions tropicales, en comparaison avec l'impact d'une modification du schéma de convection profonde.

	BG			EXT			OBSERVATION
	TD	SP	NP	TD	SP	NP	
Couche limite	1815	1820	1823	1817	1825	1827	1844
Troposphère Libre	1772	1769	1791	1772	1772	1794	1806
Gradient	43	51	32	45	53	33	38

TABLE 6.12: Concentrations de méthane (en ppb) dans la couche limite et la troposphère libre simulées par les différentes versions de LMDz utilisant les flux optimisés des inversions de surface (BG et EXT) et observées au cours de la campagne de mesure BARCA-B en mai 2009. Les gradients verticaux (en ppb) entre la couche limite et la troposphère libre sont également comparés.

On remarque également qu'il y a très peu de différences entre les concentrations simulées qui utilisent les flux optimisés provenant des inversions BG et EXT. En effet, très peu d'observations contraignent les flux de l'Amérique du Sud que ce soit dans le cas du réseau BG ou du réseau EXT. Ainsi, il n'est pas surprenant d'obtenir des résultats très

proches entre les inversions contraintes par les mesures du réseau BG et du réseau EXT.

Les campagnes de mesures BARCA ne coïncident pas avec la disponibilité des données satellites GOSAT (lancement en janvier 2009), c'est pourquoi les profils verticaux associés aux flux optimisés par PR-LEI ne sont pas présentés dans cette section. Cependant, il serait très précieux dans le futur de pouvoir bénéficier à nouveau de ce type de données aéroportées qui permettent d'obtenir de l'information à différents niveaux de l'atmosphère et de valider les modèles de chimie-transport.

6.8 Le puits chimique par OH

On présente ici des résultats portant sur le puits chimique de CH_4 par le radical OH. En effet, dans les sections précédentes nous nous sommes intéressés exclusivement aux résultats (variabilité interannuelle, bilan planétaire et régional, tendance sur les années récentes, etc.) traitant des émissions de méthane. Or, la variabilité de la concentration de méthane dans l'atmosphère résulte de l'équilibre entre les émissions de méthane à la surface, les puits chimiques (principalement par le radical OH) et le transport atmosphérique. Pour illustrer cela, on présente la variabilité de la concentration de méthane entre 2006 et 2012 à Alert (à gauche) et à Cape Grim (à droite) sur la figure 6.15.

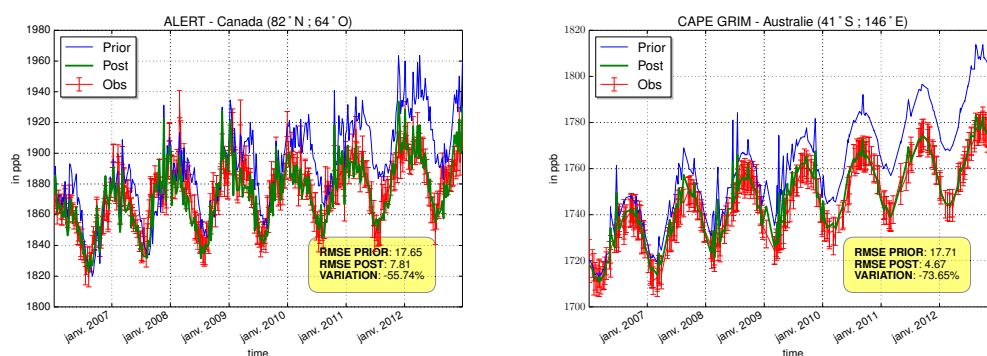


FIGURE 6.15: Séries temporelles des concentrations de CH_4 *a priori* (en bleu), optimisées (en vert) et mesurées (en rouge) à Alert (Canada) et à Cape Grim (Australie) entre 2006 et 2012. Les barres d'erreurs indiquent les erreurs faites sur les mesures.

Avant optimisation, l'équilibre entre les émissions et les puits de méthane ne permet pas de reproduire la tendance observée des concentrations de CH_4 entre 2006 et 2012 à Alert et à Cape Grim. Après l'optimisation des concentrations atmosphériques par la procédure inverse qui a permis d'ajuster les sources et puits de méthane, la tendance observée est correctement reproduite aux deux stations.

On note également de fortes variabilités saisonnières de la concentration de CH_4 à ces deux stations. La station de Cape Grim en Australie est située relativement loin d'émissions de méthane variant saisonnièrement. Ainsi, la variabilité saisonnière des concentrations de CH_4 à Cape Grim est principalement expliquée par la variabilité des concentrations de OH. En effet, le pic de CH_4 mesuré à la fin de l'hiver austral correspond au minimum de OH dans l'hémisphère sud. Au contraire, le creux de CH_4 mesuré chaque année à la fin de l'été austral correspond au maximum des concentrations de OH. A Alert, la variabilité synoptique est plus importante qu'à Cape Grim, témoignant

du transport atmosphérique de méthane depuis des zones émettrices. Cependant, la variabilité saisonnière des concentrations de CH_4 s'explique également par la variabilité des concentrations de OH : le creux et le pic de CH_4 correspondent respectivement au maximum et au minimum des concentrations de OH à la fin de l'été et de l'hiver boréal.

Il a été vu dans les sections 3.3.2 et 6.1.4 que les concentrations de OH ont été optimisées par les concentrations de CH_3CCl_3 (méthyl-chloroforme, MCF) dans les différentes inversions menées au cours de ce travail. Cependant, il faut rappeler que la concentration atmosphérique de CH_3CCl_3 a diminué exponentiellement depuis la fin des années 90 après l'application du protocole de Montréal qui visait à réduire les niveaux atmosphériques des composés appauvrissant la couche d'ozone. La figure 6.16 illustre cette forte décroissance en présentant la série temporelle des concentrations de MCF entre 2006 et 2012 à Harvard Forest. Les concentrations de MCF passent de 16.9 ppt en janvier 2006 à 6.0 ppt à la fin de l'année 2012.

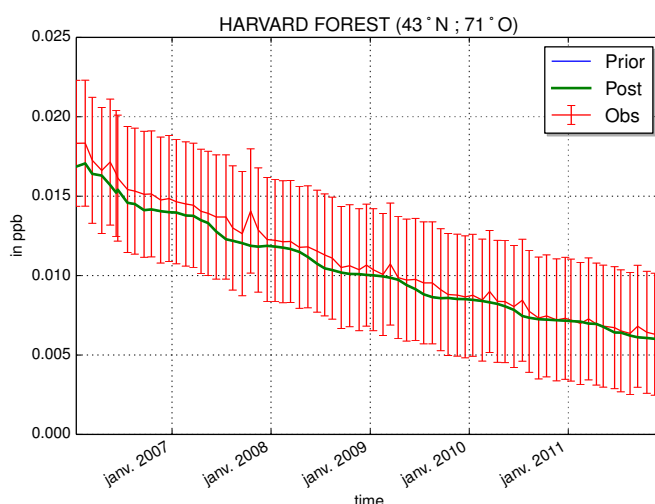


FIGURE 6.16: Série temporelle de la concentration mesurée (en rouge), *a priori* (en bleu) et *a posteriori* (en vert) de méthyl-chloroforme (CH_3CCl_3) à Harvard Forest (Etats-Unis) entre 2006 et 2012. Les barres d'erreurs rouges indiquent les erreurs faites sur les mesures de MCF.

En conséquence de ces concentrations faibles, il est apparu que les concentrations de OH étaient peu contraintes par les concentrations de MCF. En effet, on rappelle que les concentrations de MCF sont optimisées dans PYVAR-LMDz-SACS en considérant que les émissions de MCF sont bien connues (l'erreur *a priori* sur les flux *a priori* de MCF est de 1%) et en ajustant les concentrations *a priori* de MCF sur les concentrations mesurées en modifiant les concentrations de OH. Cependant, des concentrations de MCF autour de 5 ppt associées à des erreurs de 2-3 ppt ne permettent pas de contraindre efficacement les concentrations de OH. Ainsi, le champ de OH optimisé est très proche du champ de OH *a priori* décrit dans la section 3.4.2. On rappelle qu'il provient d'une simulation réalisée avec le modèle de chimie-climat LMDzORINCA (Szopa et al., 2013). La figure 6.17 présente la moyenne glissante sur 12 mois de la concentration troposphérique de OH pour les trois versions du modèle. La courbe noire présente la moyenne glissante de la concentration *a priori* de OH. Elle reste constante autour de $11.74 \text{ molécules.cm}^{-3}$ car aucune variabilité interannuelle n'a été considérée

dans le champ *a priori* de OH. Les champs de OH obtenus dans les 3 versions du système restent effectivement proches du champ *a priori*, car les concentrations de OH restent comprises entre 11.72 et 11.78 molécules.cm⁻³ entre 2006 et 2012. A partir de 2008, on constate une très légère tendance positive des concentrations de OH passant, en moyenne, de 11.73 à 11.75 molécules.cm⁻³ entre 2008 et mi-2012. Cette tendance équivaut à une augmentation de 0.2% des concentrations de OH, ce qui équivaut à un impact de 1 TgCH₄.an⁻¹ sur les émissions de méthane estimées par modélisation inverse (on considère qu'une modification de 1% des concentrations de OH engendre un impact de 5 TgCH₄ sur les émissions).

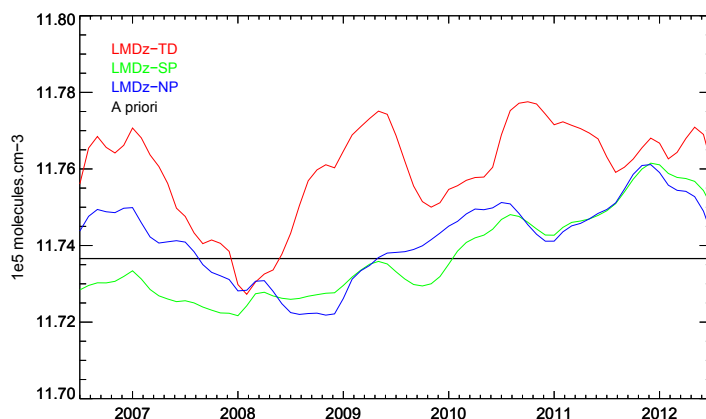


FIGURE 6.17: Moyenne glissante sur 12 mois de la concentration troposphérique de OH *a priori* (en noir) et optimisée dans les 3 versions du système (LMDz-TD en rouge, LMDz-SP en vert et LMDz-NP en bleu).

Les caractéristiques des concentrations du OH considérées dans nos inversions sont comprises dans les fourchettes d'incertitudes existant actuellement sur la moyenne globale, la distribution spatiale et la variabilité interannuelle de OH (Naik et al., 2013). En effet, les incertitudes existant actuellement sur la valeur moyenne globale des concentrations de OH sont comprises entre 7.4 et 13.3 molécules.cm⁻³ (moyenne de 11.1 molécules.cm⁻³ et un écart-type de 1.6 molécules.cm⁻³) selon Naik et al. (2013). Il existe également de grandes incertitudes sur les variabilités interannuelles (Bousquet et al., 2005; Prinn, 2005; Montzka et al., 2011). Au vu de ces incertitudes et malgré le fait que l'optimisation des concentrations de OH par les concentrations de MCF soit aujourd'hui peu efficace, il n'est pas incohérent d'utiliser un champ de OH climatologique sans variabilité interannuelle. C'est notamment ce qui a été fait dans d'autres études récentes (Bergamaschi et al., 2013; Houweling et al., 2014).

Récemment, Patra et al. (2014) ont mené une étude sur la distribution inter-hémisphérique des concentrations de OH. Ils ont démontré que le rapport des concentrations de OH dans l'hémisphère nord et celles dans l'hémisphère sud (OH_{HN}/OH_{HS}) était de 0.97 ± 0.12 . Pour cela, ils ont basé leur étude sur des concentrations de MCF fournies par différents réseaux de mesures et des mesures avions. Leur résultat s'oppose aux résultats trouvés dans l'intercomparaison ACCMIP (Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project) de Naik et al. (2013) car la moyenne (et l'écart-type associé) du rapport de OH_{HN}/OH_{HS} pour les différents modèles de cette intercomparaison atteint 1.28 ± 0.10 avec une fourchette allant de 1.13 à 1.42. En particulier, le rapport OH_{HN}/OH_{HS} reporté pour LMDzORINCA est de 1.24 pour

les années 2000. Après calcul, il s'avère que le champ de OH utilisé dans nos inversions a un rapport $\text{OH}_{\text{HN}}/\text{OH}_{\text{HS}}$ de 1.27 pour les trois versions de LMDz. Le rapport $\text{OH}_{\text{HN}}/\text{OH}_{\text{HS}}$ est en cohérence avec les valeurs reportées dans ACCMIP. Cela confirme encore que l'optimisation de OH par les concentrations de MCF n'est pas efficace dans notre système et il n'est alors pas étonnant de trouver un rapport $\text{OH}_{\text{HN}}/\text{OH}_{\text{HS}}$ proche de celui de LMDzORINCA reporté dans ACCMIP. Ainsi, le rapport $\text{OH}_{\text{HN}}/\text{OH}_{\text{HS}}$ utilisé dans nos inversions est en désaccord avec l'étude de [Patra et al. \(2014\)](#) basée sur des mesures de MCF.

[Patra et al. \(2014\)](#) évoquent trois raisons principales pour expliquer le désaccord entre la distribution inter-hémisphérique des concentrations de OH simulée par les modèles inclus dans ACCMIP et celle de leur étude basée sur des mesures de MCF :

- les sources de OH sont surestimées dans l'hémisphère nord (HN), probablement à cause d'une surestimation des concentrations de O_3 dans le HN ([Naik et al., 2013](#))
- les puits de OH sont sous-estimés dans le HN ([Mao et al., 2013](#))
- les sources de OH dans le HS peuvent être sous-estimées ([Taraborrelli et al., 2012](#))

Quelle que soit la raison expliquant ce désaccord, si on considère le rapport $\text{OH}_{\text{HN}}/\text{OH}_{\text{HS}}$ trouvé par [Patra et al. \(2014\)](#) comme le plus probable (car basé sur des mesures) il vient alors que des simulations basées sur un rapport de $\text{OH}_{\text{NH}}/\text{OH}_{\text{SH}}$ de 1.27 produisent respectivement une sous-estimation et une surestimation des concentrations de CH_4 dans l'hémisphère nord et dans l'hémisphère sud. Par conséquent, les estimations par modélisation inverse basées sur un tel rapport trouvent un surplus d'émissions de méthane dans l'hémisphère nord et un déficit dans celles de l'hémisphère sud. En effet, [Patra et al. \(2014\)](#) concluent que les estimations des émissions des espèces réactives (comme CH_4 , mais aussi comme CO , NO_x et SO_x) par une approche descendante utilisant un rapport compris dans la fourchette de l'expérience ACCMIP sont surestimées dans l'hémisphère nord. Ils quantifient cela en donnant l'exemple de l'estimation des émissions de méthane. En effet, ils montrent, avec leur système inverse, qu'utiliser un rapport de $\text{OH}_{\text{HN}}/\text{OH}_{\text{HS}}$ de 1.26 engendre des émissions dans le HN de $430 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ et $119 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ dans le HS. Au contraire, en satisfaisant un rapport de $\text{OH}_{\text{HN}}/\text{OH}_{\text{HS}}$ de 0.99 l'estimation trouve des émissions de $398 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ dans le HN et $151 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-1}$ dans le HS. Dans notre système inverse, on obtient une estimation moyenne des émissions de 394 et 138 TgCH_4 pour respectivement le HN et HS en 2010. Ces chiffres ne sont pas directement comparables avec ceux de l'étude de [Patra et al. \(2014\)](#) car ils sont basés sur un système inverse (modèle de transport, information *a priori*, etc.) différent et sont relatifs à une période différente. Cependant, on peut considérer que les estimations des émissions par nos inversions seraient proches de 370 et 160 TgCH_4 en 2010 pour respectivement le HN et HS, en satisfaisant le rapport $\text{OH}_{\text{HN}}/\text{OH}_{\text{HS}}$ de 0.99.

Les caractéristiques du radical OH (durée de vie très court, concentrations faibles, etc.) font qu'il est très difficile d'avoir une connaissance précise de ce composé chimique. Cependant, il est essentiel d'avoir un maximum d'informations sur cet espèce pour pouvoir aborder efficacement l'estimation des sources et puits de méthane. Le peu de contraintes apportées par le MCF dans notre système au cours de ces dernières années est problématique pour connaître la valeur absolue et la tendance des concentrations de OH. Certaines études se sont intéressées à d'autres espèces chimiques ayant des caractéristiques similaires à MCF en vue de contraindre de la même manière les concentrations de OH. C'est le cas par exemple de [Fortems-Cheiney et al. \(2013\)](#) et [Saikawa et al. \(2012\)](#) qui ont analysé les caractéristiques du HCFC-22. D'autres composés, comme le HFC-134a, pourraient également permettre de contraindre le radical

OH à condition que leurs émissions soient bien connues. Une autre manière d'aborder les incertitudes liées aux concentrations de OH serait de produire différentes inversions basées sur différentes distributions du champ de OH pour donner un intervalle de confiance dans les estimations des sources et puits de méthane.

Conclusions du chapitre

Trois versions du système inverse basées sur différentes versions de LMDz ont été mises en place et permettent aujourd'hui d'estimer les sources et puits de méthane. Ces versions se différencient de la version d'origine par la résolution verticale et horizontale, et par les paramétrisations physiques utilisées.

A partir de ces développements, plusieurs caractéristiques des inversions atmosphériques actuelles ont été établies concernant :

- la sensibilité des inversions atmosphériques aux paramétrisations physiques de la convection profonde, de la diffusion verticale et du mélange non-local par les thermiques dans la couche limite.
Un résultat important de cette partie montre que disposer de différentes configurations physiques d'un même modèle permet de prendre en compte entre 10 et 50% (selon les échelles) des incertitudes introduites par la modélisation du transport atmosphérique et estimées à partir de l'ensemble des modèles TRANSCOM.
- la cohérence entre les inversions de surface et les inversions satellites. Cette partie a notamment montré que des incohérences importantes (plusieurs dizaines de ppb) subsistent entre l'atmosphère vue par les données satellites de méthane et par les inversions de surfaces, ce qui impose d'importantes corrections de biais pour qui veut utiliser les données satellites GOSAT dans les inversions.
- la variabilité spatio-temporelle et le bilan des flux de méthane entre 2006 et 2012. Un résultat important de cette partie concerne la quantification de l'anomalie d'émissions de méthane de 2010-2011 qui est partagée entre l'Asie du Sud-Est (35% de l'anomalie globale) et l'Amérique du Sud tropicale (40%), traduisant un partage entre cause naturelle et anthropique.

Finalement, les résultats de ce chapitre constituent l'aboutissement des travaux de cette thèse. Je développe plus en détails les conclusions de mes travaux dans le chapitre conclusif suivant en cherchant à donner des perspectives et des recommandations pour la poursuite de ce travail.

Conclusions et perspectives

L'OBJECTIF INITIAL de cette thèse consistait à proposer un scénario d'émissions de méthane entre 2006 et 2012 à l'aide de la modélisation inverse de la chimie et du transport atmosphérique. Quand j'ai démarré mon travail de thèse, la question de l'impact des erreurs de transport sur les inversions de méthane était émergente, notamment avec l'article de [Patra et al. \(2011\)](#). Par ailleurs, la disponibilité grandissante de nouvelles données pour contraindre les inversions (données satellites, mesures de surface à hautes fréquences, mesures sur le profil vertical, etc.) avaient mis en lumière certains défauts des modèles de chimie-transport, trop peu évalués jusqu'à présent avec ce type de données, limitant les capacités des systèmes inverses actuels.

La première étude que j'ai menée a montré que l'impact des erreurs de transport atmosphérique sur les résultats de l'inversion pouvait être important, et ce d'autant plus qu'on regardait à une échelle spatiale fine (chapitre 4). Il m'a semblé alors opportun de travailler à l'amélioration de la représentation du transport atmosphérique en implémentant et testant de nouvelles paramétrisations physiques et une résolution spatiale améliorée du modèle LMDz, utilisé dans le système d'inversion du LSCE (chapitre 5). Ce faisant, j'ai mis en place trois configurations de LMDz, qui m'ont permis de tester la robustesse des bilans de méthane réalisés par inversion vis-à-vis de différentes représentations du transport atmosphérique (chapitre 6). Ainsi, la représentation du transport atmosphérique dans LMDz et l'étude de l'impact des erreurs de modélisation sur les estimations par modélisation inverse ont constitué le « fil rouge » de cette thèse, qui a bien produit le bilan de méthane pour la période 2006-2012 tel qu'initialement prévu.

Dans ce contexte et au regard des différents résultats exposés dans ce manuscrit, je présente les principales conclusions de ces travaux de thèse dans la section 7.1 et quelques perspectives pour poursuivre ce travail sont détaillées dans la section 7.2.

7.1 Conclusions

7.1.1 Le transport atmosphérique dans la version « offline » de LMDz

La version « offline » de LMDz utilisée dans la version d'origine de PYVAR ([Chevallier et al., 2005](#)) est longtemps restée figée dans sa configuration initiale. En effet, les études de [Chevallier et al. \(2005\)](#), [Chevallier et al. \(2007\)](#), [Pison et al. \(2009\)](#), [Yver et al. \(2011\)](#), [Fortems-Cheiney et al. \(2011\)](#), [Fortems-Cheiney et al. \(2012\)](#),

Fortems-Cheiney et al. (2013), Locatelli et al. (2013) et Cressot et al. (2014) ont toutes été réalisées avec la même version du modèle de transport. Cette version « offline » de LMDz est basée sur des paramétrisations physiques (Louis, 1979; Tiedtke, 1989) et des configurations du modèle (résolution horizontale de $3.75^\circ \times 2.5^\circ$ et 19 niveaux verticaux entre la surface et 3 hPa) issues des développements de LMDz et des contraintes liées au temps de calcul de la fin des années 90.

L'augmentation des temps de calcul entre la fin des années 90 et aujourd'hui a permis, dans un premier temps, d'augmenter la résolution horizontale et verticale du modèle de transport utilisé dans PYVAR. Cette amélioration a permis notamment de mieux replacer la version offline de LMDz dans la moyenne des modèles de chimie-transport de la communauté scientifique concernant la résolution verticale. En effet, l'ancienne version était fortement affectée par la résolution verticale trop grossière qui ne permettait pas, par exemple, de représenter correctement les échanges entre la troposphère et la stratosphère (Thompson et al., 2014). De plus, les paramétrisations physiques du modèle de climat LMDz ont subi de nombreux développements au cours des années 2000 (Hourdin et al., 2002, 2006; Rio and Hourdin, 2008; Hourdin et al., 2012a,b). Il aurait été pénalisant de ne pas profiter de ces développements au sein du système inverse en sachant que ce système présentait plusieurs défauts pour modéliser le transport atmosphérique de gaz traces (variabilité des concentrations de gaz traces dans la couche limite sous-estimée, échanges inter-hémisphériques surestimés, etc.). L'utilisation du schéma de convection profonde de Emanuel (1991), dont il a été prouvé qu'il permettait de mieux représenter la circulation de Hadley-Walker (Hourdin et al., 2006), a permis d'apporter une amélioration qui s'est avérée non négligeable sur la représentation des échanges inter-hémisphériques. De plus, l'implémentation du modèle des thermiques et d'un nouveau schéma de diffusion verticale dans la version « offline » de LMDz a permis d'augmenter fortement le réalisme de la variabilité des concentrations atmosphériques de gaz traces dans la couche limite.

Ces différents résultats ont été obtenus selon une méthodologie en deux temps. Dans un premier temps, on a bénéficié d'une simulation à grands tourbillons (Large Eddy Simulation, LES) pour analyser les capacités des différentes versions de LMDz dans une configuration unidimensionnelle du modèle. Ces simulations ont montré clairement un gain de la représentation du transport vertical avec la nouvelle version du modèle pour un traceur à courte durée de vie. Dans un second temps, des comparaisons de simulations tridimensionnelles de LMDz avec des observations ont été mises en place selon une approche « multi-traceurs ». On parle d'approche « multi-traceurs » car le choix du traceur étudié a été adapté selon les caractéristiques du modèle que l'on cherchait à évaluer. Le ^{222}Rn a été utilisé pour étudier des processus atmosphériques en accord avec son temps de demi-vie dans l'atmosphère (mélange dans la couche limite), le SF_6 a été étudié pour comprendre les échanges de grande échelle et l'étude de l'impact des paramétrisations physiques sur un gaz réactif a été abordé avec le CH_4 . Les trois principales améliorations visibles avec la nouvelle version concernent les échanges troposphère/stratosphère (principalement grâce à la meilleure résolution verticale), la variabilité synoptique près des sources (principalement grâce au schéma de couche limite), et le gradient nord-sud des concentrations (principalement grâce au schéma de convection). Concernant ce dernier point, on reviendra dans la section « Perspectives » (section 7.2.1) sur les enseignements et les perspectives que l'on peut donner de notre étude du temps d'échange inter-hémisphérique.

La plus grande sensibilité de LMDz près de la surface dans sa nouvelle version est apparue comme un résultat à double tranchant : elle permet d'améliorer la représentation de la variabilité synoptique si la météorologie forçant le modèle est bonne et si le scénario de flux place les émissions au bon endroit à l'échelle du modèle, mais dans le cas contraire les résultats peuvent être considérablement dégradés.

Au final, trois versions du modèle LMDz dans sa version offline sont aujourd'hui opérationnelles au LSCE, au sein d'un système d'inversion des flux de méthane, ce qui est probablement unique au niveau international. Cet ensemble permet de tester la robustesse des estimations inverses vis-à-vis de l'erreur de transport.

7.1.2 L'impact des erreurs de transport sur les estimations des émissions de méthane par modélisation inverse

La première partie de la thèse a été consacrée à quantifier la confiance que l'on peut accorder dans les estimations des sources et puits de méthane par modélisation inverse malgré les erreurs introduites par une mauvaise représentation du transport atmosphérique. A partir d'une intercomparaison d'inversions atmosphériques basées sur un ensemble représentatif de modèles de chimie-transport, il est établi que les erreurs de transport peuvent engendrer une incertitude de 27 TgCH₄ (5% des émissions globales annuelles) dans les estimations des flux de méthane globaux annuels. A l'échelle régionale, la confiance que l'on peut accorder aux inversions est plus faible, puisque les estimés peuvent différer jusqu'à 35 TgCH₄ en Amérique du Sud, ce qui correspond à 48% des émissions de cette région. Ces différences peuvent aller au delà de 100% du flux à l'échelle de la maille du modèle.

De plus, le développement des différentes versions du système inverse qui se distinguent par l'utilisation de différentes paramétrisations physiques dans LMDz ont également permis de quantifier l'impact de ces paramétrisations sur l'estimation des sources et puits de méthane. Ainsi, l'un des types d'erreurs contribuant à l'erreur totale de transport a pu être isolé et quantifié. A l'échelle globale, l'impact des erreurs des paramétrisations physiques est relativement faible puisqu'elles représentent une incertitude de 0.5% (4.1 TgCH₄), soit 16% de l'erreur totale due au transport telle qu'estimée avec l'ensemble des modèles TRANSCOM. Pour autant, à l'échelle régionale, les incertitudes peuvent atteindre jusqu'à 18.1% (12.8 TgCH₄), et peuvent représenter dans certaines régions plus de 50% des erreurs totales de transport.

Les biais significatifs impactant les inversions atmosphériques actuelles utilisant des données satellites ont également été étudiés. Il s'agit d'un point critique étant donné les enjeux liés à l'utilisation des données satellites. Tout d'abord, il a été montré que l'amélioration de la représentation du gradient de la concentration de méthane entre la troposphère et la stratosphère a permis d'expliquer une partie de ce biais. Ensuite, il a été montré que ce biais était insensible aux diverses paramétrisations physiques testées dans le système inverse, ce qui permet de conclure qu'ils sont liés soit aux données satellites elles-mêmes soit à d'autres aspects du transport non testés. Afin de, tout de même, utiliser les données satellites, j'ai proposé un schéma d'inversion en 2 temps : les biais des données satellites sont corrigés zonalement en comparant les concentrations de surface simulées par une première inversion réalisée sans correction avec les observations de surface, puis en réalisant une seconde inversion avec les données débiaisées. Ce faisant, les données satellites permettent d'amener des contraintes à l'échelle régionale sur la spatialisation et les variations des émissions, les données de surface contraignant les valeurs moyennes grande échelle des émissions.

7.1.3 Estimation des sources et puits de méthane entre 2006 et 2012

En prenant en compte, au moins partiellement les erreurs de transport grâce aux différentes versions de LMDz, j'ai estimé par modélisation inverse les émissions de méthane entre 2006 et 2012. L'ensemble des flux de méthane estimés à partir des diffé-

rentes versions du système inverse nous permet d'accorder un degré de confiance à nos estimations selon la cohérence qu'elles ont entre elles.

On a cherché, dans un premier temps, à détecter les anomalies des émissions de méthane à grande échelle. Il est montré que la période 2006-2012 est, en particulier, marquée par :

- une forte anomalie positive des émissions de méthane en 2007
- une baisse notoire des émissions en 2008 et 2009 en comparaison à 2007
- une nouvelle forte anomalie positive en 2010, plus importante qu'en 2007
- une baisse des émissions à partir du milieu de l'année 2011

Dans un second temps, l'attribution de ces différentes anomalies à un processus ou une région spécifique a été étudiée en s'appuyant également sur des approches montantes (inventaires anthropiques et modèle de végétation pour les émissions par les zones inondées naturelles). La forte anomalie de 2007 est expliquée par plusieurs anomalies simultanées dans les flux inversés : une augmentation rapide des émissions anthropiques en Chine, une augmentation des émissions dans les tropiques (en Amérique du Sud principalement) qui atteignent le pic d'émission à la fin de l'année 2007 et une augmentation des émissions dans les régions boréales cohérentes avec les conditions climatiques anormalement chaudes rencontrées dans ces régions au cours de l'été 2007. La forte anomalie de 2010-2011 est en grande partie attribuée à une anomalie forte des émissions dans les tropiques, qui est répartie entre l'Amérique du Sud tropicale et l'Asie du Sud-Est. Le phasage de l'anomalie et l'attribution de cette anomalie aux conditions climatiques particulières de la région (sécheresse dans le bassin de l'Amazonie et conditions La Niña dans le Pacifique) requièrent des études supplémentaires pour lever les incertitudes mises au jour dans ce travail.

D'une manière générale, les régions tropicales, qui sont caractérisées par de fortes émissions de méthane d'origines naturelles, contribuent notablement aux deux anomalies détectées au cours de la période 2006-2012. Ce constat est confirmé par une comparaison des résultats issus des inversions atmosphériques avec des estimations des émissions par les zones humides faites par le modèle de végétation ORCHIDEE. La cohérence entre ces différentes estimations est plutôt bonne à l'échelle mondiale, même si des incohérences (déphasage des anomalies, signe des anomalies) apparaissent à l'échelle d'une région comme l'Amérique du Sud tropicale. Cependant, le phasage temporel entre les événements La Niña (2007-2008 et 2010-2011) et les anomalies des émissions de méthane est flagrant. Ces différents résultats confirment que les émissions par les zones humides dans les régions tropicales contribuent fortement à la variabilité des émissions de méthane durant la période 2006-2012.

La tendance des émissions inversées de méthane sur la période 2006-2012 est positive ($+1.4 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-2}$) selon la moyenne des inversions atmosphériques. Dans les tropiques, des incertitudes subsistent sur l'amplitude des deux anomalies mises en évidence, ce qui ne permet pas de conclure de manière fiable sur la tendance des émissions. Cependant, l'hypothèse la plus fiable est que les émissions par les zones humides dans les tropiques ont également une tendance positive entre 2006 et 2012. De plus, il est clair que la tendance des émissions anthropiques de l'est de l'Asie (la Chine notamment) est fortement surestimée par l'inventaire EDGAR version 4.2FT2010. Mais, il faut tout de même garder à l'esprit que la tendance des émissions en Chine reste la plus forte ($+0.9 \text{ TgCH}_4.\text{an}^{-2}$) des principaux pays émetteurs de méthane d'origine anthropique.

7.2 Perspectives

7.2.1 La modélisation du transport atmosphérique dans la version « offline » de LMDz

A court terme, plusieurs pistes sont envisageables pour apporter de nouvelles améliorations à la modélisation du transport atmosphérique dans la version « offline » de LMDz.

La première piste consiste à intégrer les paramétrisations des poches froides ([Grandpeix and Lafore, 2010](#); [Grandpeix et al., 2009](#)) qui ne sont actuellement pas prises en compte dans la modélisation du transport atmosphérique des traceurs. Ce schéma met en équation les courants de densité générés par les courants descendants dus aux précipitations sous un nuage convectif et qui sont connus pour être des éléments essentiels de la convection. En effet, les courants de densité sont connus pour inhiber la convection dans la zone où ils s'étendent (zone que l'on appelle la « poche froide »), mais ils sont connus aussi pour déclencher la convection aux frontières de cette zone. De plus, les courants de densité impactent le cycle de vie de l'activité convective et peut affecter l'organisation et la propagation des systèmes convectifs. Ainsi, il serait bénéfique d'incorporer cette paramétrisation physique au système inverse du LSCE.

La deuxième piste consiste à approfondir notre connaissance des capacités du modèle en continuant de mener des comparaisons de simulations unidimensionnelles de LMDz avec des simulations à grands tourbillons (Large Eddy Simulation, LES) comme cela a été fait dans la section 5.4 dans un cas de convection peu profonde. Il avait été envisagé de réaliser une étude similaire pour un cas de convection profonde, le cas TWP-ICE (Tropical Warm Pool International Cloud Experiment) pour lequel des simulations LES étaient disponibles, mais les contraintes de temps associées au travail de thèse n'ont pas permis d'aboutir sur cette étude. Cependant, sachant que de grandes quantités de méthane sont émises dans les régions tropicales où la convection est intense, il est certain que l'étude de ce cas, ou de cas d'études similaires, apporterait beaucoup sur la compréhension de la représentation des processus de transport dans LMDz. Il est également important de poursuivre, en parallèle, des comparaisons multi-traceurs dans la configuration tridimensionnelle de LMDz pour valider le modèle. La durée de vie, la réactivité chimique, la répartition spatiale des émissions de différents traceurs font que chaque traceur apporte des informations complémentaires sur la compréhension des processus de transport atmosphérique.

Je serais également intéressé pour étudier l'impact de l'utilisation de différents forçages météorologiques sur la modélisation du transport atmosphérique par LMDz et de quantifier cet impact sur les flux de méthane estimés par modélisation inverse. Dans cette thèse, seuls les champs de vents issus d'ERA-Interim ont été utilisés pour « nudger » les simulations. La figure 7.1 illustre cela en présentant la moyenne zonale de la concentration de SF₆ simulée par le modèle MOZART ([Brasseur et al., 1998](#); [Emmons et al., 2010](#)) en utilisant trois forçages météorologiques différents (NCEP/NCAR, GEOS-5 et GFS). Une telle étude permettrait également d'affiner la décomposition de l'impact des différentes erreurs affectant la modélisation du transport sur les inversions atmosphériques, que j'ai amorcée dans cette thèse en distinguant l'impact des paramétrisations physiques.

De plus, plusieurs enseignements peuvent être tirés de ce travail sur l'étude des échanges inter-hémisphériques. Chronologiquement, j'ai voulu d'abord étudier les caractéristiques de LMDz-NP avant de lancer des inversions atmosphériques avec cette nouvelle version dans le but de tirer des conclusions sur les capacités du modèle sans être influencé par les résultats des inversions. Ainsi, on a diagnostiqué l'amélioration de la représentation du gradient troposphère/stratosphère que nous avons principale-

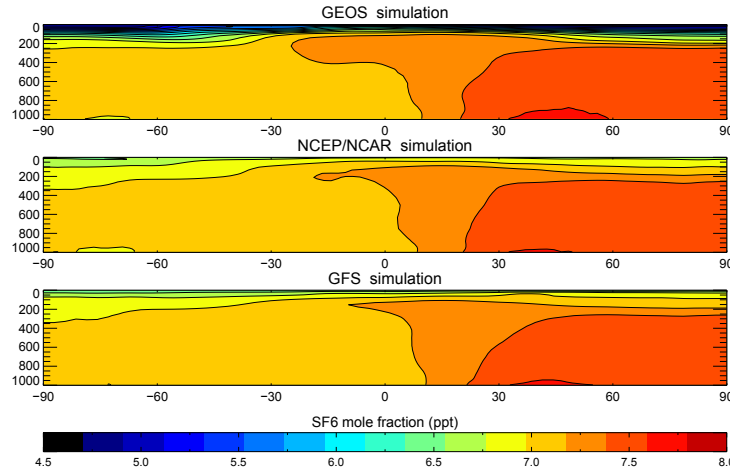


Figure 3. Latitude-pressure cross-sections of monthly mean SF_6 mole fraction for August 2007
FIGURE 7.1: Moyenne zonale des concentrations atmosphériques de SF_6 (en ppt) simulées par le modèle de chimie-transport, MOZART, en utilisant trois forçages météorologiques différents (NCEP/NCAR, GEOS-5 et GFS). Simulation réalisée au cours de mon stage de master 2 supervisé par Matt Rigby.

ment analysée comme pouvant impacter les inversions de gaz dont les concentrations stratosphériques pouvaient influencer les concentrations troposphériques. On avait moins anticipé l'impact de ce résultat sur la représentation des colonnes totales de méthane, ce qui impacte directement les inversions satellites. On a également pu évoquer les améliorations (meilleure représentation de la variabilité synoptique près des sources) et les problèmes (grande sensibilité aux fichiers de forçage), que peut apporter un système simulant une variabilité plus importante des concentrations de gaz traces dans la couche limite, avant de faire les inversions. Concernant les échanges inter-hémisphériques (IH), on a utilisé le diagnostic du temps d'échange IH présenté dans [Patra et al. \(2011\)](#). Cependant, les incertitudes associées à ce diagnostic sont apparues plus grandes que l'écart entre les temps d'échanges IH trouvés pour les différentes versions de LMDz. En conséquence, on a préféré analyser les échanges IH à partir du gradient IH de SF_6 . On a ainsi diagnostiqué que la version LMDz-SP simulait des échanges IH plus lents, et plus proches des observations, que LMDz-TD car le gradient IH des concentrations de SF_6 était plus grand. Cependant, les différences trouvées dans le gradient IH des concentrations de SF_6 nous paraissaient faibles (~ 0.02 ppt) et on ne s'attendait pas à obtenir de si grosses différences ($\sim 15-20$ Tg CH_4) entre les gradients IH des flux de méthane obtenus par inversions (voir section 6.4). Aujourd'hui, on peut présenter la figure 7.2 qui fait une synthèse des études de [Patra et al. \(2011\)](#), [Locatelli et al. \(2013\)](#) et [Locatelli et al. \(2014\)](#). Elle montre l'écart entre le gradient IH des émissions de méthane obtenu avec différents systèmes inverses et celui obtenu avec la version d'origine de PYVAR-LMDz-SACS en fonction de l'écart entre le gradient IH des concentrations de SF_6 simulées par différents modèles de transport et l'ancienne version de LMDz (LMDz-TD avec 19 niveaux verticaux (LMDz-19)). Les croix noires représentent les 9 modèles utilisés à la fois dans les intercomparaisons de [Patra et al. \(2011\)](#) et [Locatelli et al. \(2013\)](#) et les croix rouges et vertes sont respectivement associées à LMDz-NP et LMDz-SP. L'ancienne version (LMDz-19) est le point rouge située en (0;0) car on représente ici les écarts des gradients relativement à cette version de LMDz. On trouve ainsi que le gradient IH de SF_6 simulé par LMDz-NP est 0.02 ppt plus fort que celui de LMDz-19 et, le gradient IH des émissions de méthane estimé par PYVAR-LMDz-NP-SACS est 18 Tg CH_4 plus petit que celui estimé par la version d'origine

de PYVAR-LMDz-SACS. On peut donner, comme ordre de grandeur, qu'un écart de 0.1 ppt du gradient IH des concentrations de SF_6 simulé par deux modèles peut engendrer des différences de $\sim 70 \text{ TgCH}_4$ dans le gradient IH des émissions de méthane par deux systèmes inverses basés sur ces deux modèles de transport. C'est donc un diagnostic extrêmement sensible. Nous conseillons par la suite d'analyser le temps d'échange IH des modèles de chimie-transport à partir des concentrations de surface de SF_6 et d'utiliser une relation similaire à celle présentée sur la figure 7.2 pour diagnostiquer le gradient IH des émissions de gaz estimées dans les inversions.

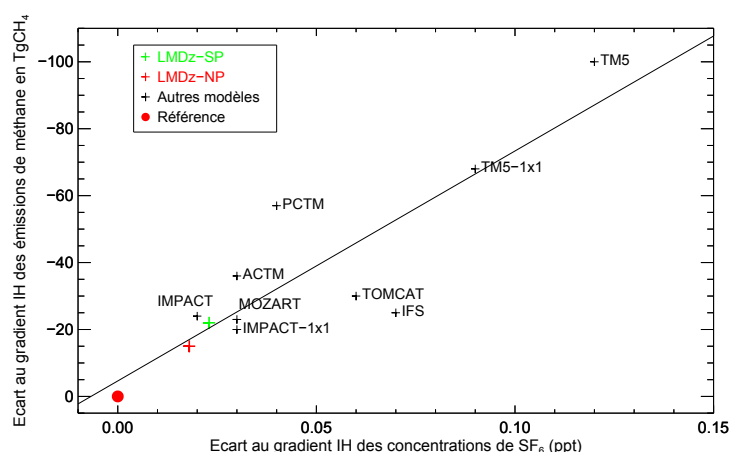


FIGURE 7.2: Ecart du gradient IH des émissions de méthane (en TgCH_4) de différents modèles par rapport au gradient IH de l'ancienne version de PYVAR-LMDz-SACS (point rouge) tracé en fonction de l'écart du gradient IH des concentrations de SF_6 (en ppt) à la surface des différents modèles par rapport à celui de l'ancienne version de LMDz (point rouge). On a utilisé les résultats de [Patra et al. \(2011\)](#), [Locatelli et al. \(2013\)](#) et [Locatelli et al. \(2014\)](#) pour tracer ce graphique. Les résultats pour LMDz-SP et LMDz-NP sont repérés respectivement par la croix verte et la croix rouge. Le point rouge est relatif à l'ancienne version de LMDz.

D'une manière générale, alors que de nouveaux développements sont en cours au LMD (Laboratoire de Météorologie Dynamique) pour passer de la version LMDz-5B (très similaire à la version LMDz-NP évoqué dans ce manuscrit) à la version LMDz6, il est important de poursuivre à évaluer la version LMDz-NP et d'éviter que LMDz-NP soit vu comme une « boîte noire » au cours de futures inversions. A mon sens, les échanges entre les personnes scientifiques en charge du développement de LMDz et les personnes scientifiques intéressées par la modélisation du transport sont essentiels pour une meilleure compréhension des distributions spatio-temporelles des flux de méthane estimés par modélisation inverse.

7.2.2 Extension du système inverse à d'autres traceurs

Les différentes versions du système inverse mises en place dans ce travail de thèse ont permis d'étudier les évolutions des sources et puits de méthane. Cependant, ce système est tout à fait applicable à d'autres composés atmosphériques dont on cherche à connaître les flux entre l'atmosphère et divers réservoirs (océan, sols, biosphère). De nombreuses études basées sur le système inverse de [Chevallier et al. \(2005\)](#) ont permis d'estimer les flux de CO_2 ([Chevallier et al., 2007, 2014](#)), de CO ([Fortems-Cheiney et al.,](#)

2011) et de H_2 (Yver et al., 2011). Aujourd'hui, peu d'adaptations sont nécessaires pour rendre le système développé dans cette thèse opérationnel pour ces différents composés atmosphériques. De plus, le fait de garder opérationnel trois versions du système permet d'envisager de faire divers tests de sensibilité avec différents transports. On pourrait tester la sensibilité au transport atmosphérique pour différents composés et analyser si les conclusions trouvées pour le méthane sont proches pour les autres gaz étudiés.

Aujourd'hui, l'estimation des flux de CO_2 utilisent déjà les diverses améliorations apportées au système. En effet, Chevallier et al. (2014) ont étudié la cohérence entre les inversions satellites et de surface en proposant des estimations des flux de CO_2 à partir du système originel et du système PYVAR-LMDz-TD-SACS. De plus, des travaux récents (Frédéric Chevallier, communication personnelle) représentés sur la figure 7.3 ont permis de présenter une comparaison des flux de CO_2 estimés par la version PYVAR-LMDz-NP-SACS (en rouge) et par la version PYVAR-LMDz-TD-SACS (en bleu).

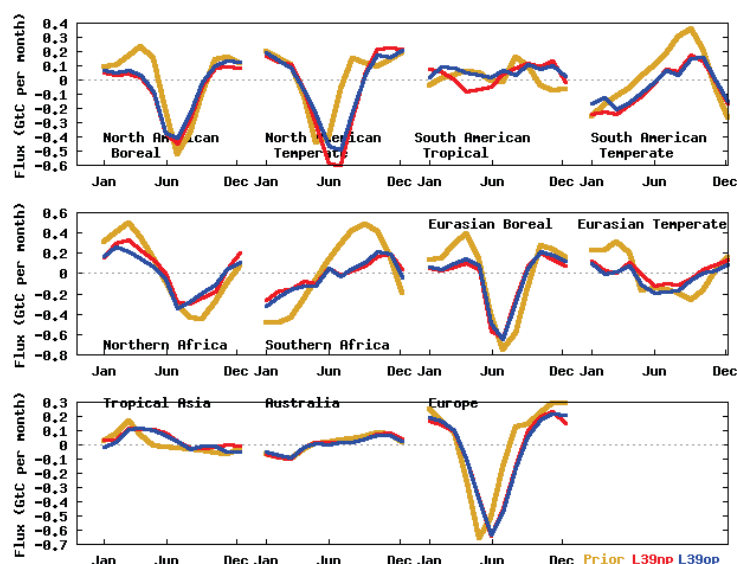


FIGURE 7.3: Estimations des flux de CO_2 à l'échelle continentale pour l'année 2010 utilisant le système PYVAR-LMDz-TD-SACS (en bleu) et PYVAR-LMDz-NP-SACS (en rouge). L'estimation *a priori* est tracée en orange. Les inversions présentées ici sont seulement contraintes par des mesures de surface. Simulations inverses réalisées par Frédéric Chevallier.

Il est intéressant de noter sur la figure 7.3 l'amplification du cycle saisonnier des flux de CO_2 en Amérique du Nord tempérée lorsque la version LMDz-NP est utilisée dans le système inverse (représentée en rouge sur la figure 7.3). Ce résultat est en cohérence avec les conclusions de la publication présentée dans la section 5.4 qui évoquaient le fait d'obtenir un puits plus large dans les régions des moyennes latitudes dû à « l'effet rectifier » plus fort simulé par LMDz-NP comparé à LMDz-TD.

De plus, les adaptations du système pour le CO sont en cours sous l'impulsion de Yi Yin (post-doc au LSCE).

Un point important à aborder pour rendre le système opérationnel pour des périodes plus longues (notamment le système PYVAR-LMDz-NP-SACS) concerne les performances de calcul du système. On a évoqué ce problème dans la section 6.1.3. En

effet, il est essentiel d'améliorer les performances du système pour pouvoir utiliser le système dans de bonnes conditions. Bien évidemment, l'augmentation des ressources de calcul est une nécessité qui permettrait de réduire efficacement ce problème. Il est également envisagé de mettre en place une lecture « parallèle » des champs de forçages puisqu'on a remarqué que le système attend longtemps, sans calculer, que la lecture des différents fichiers de forçages soit terminée. De plus, la méthode présentée par [Chevallier \(2013\)](#) sur le traitement en parallèle des inversions atmosphériques de CO_2 pourrait être adaptée, dans un futur proche, aux inversions de CH_4 .

Il est également important d'insister sur le fait que l'utilisation du système PYVAR-LMDz-NP-SACS requiert d'apporter encore plus d'attention à la spécification des erreurs de la matrice \mathbf{R} et au scénario de flux *a priori*. En effet, la forte variabilité de LMDz-NP peut entraîner des simulations erronées qui, associées dans la procédure inverse à des erreurs mal spécifiées, peut lourdement fausser l'estimation par modélisation inverse. On peut caractériser et s'assurer de la cohérence des erreurs en utilisant des méthodes statistiques comme il a été discuté à la section 4.4.1. De plus, il a été montré que LMDz-NP était plus sensible aux fichiers de forçages utilisés dans la procédure inverse, comme les forçages météorologiques par exemple. C'est également le cas pour les flux *a priori* : les conséquences d'une incohérence entre les flux *a priori* et les flux vrais auront également plus de conséquences dans le cas de LMDz-NP que LMDz-TD. Ainsi, il est également recommandé d'être plus attentif à la qualité des flux *a priori* utilisés car la version LMDz-NP devrait démontrer encore plus clairement son potentiel avec des scénarios d'émissions *a priori* plus raffinés.

7.2.3 Prise en compte de mesures isotopiques dans le système inverse

A plus long terme, la prise en compte des isotopes du méthane dans le système inverse PYVAR-LMDz-SACS est une prochaine étape dans le but d'estimer séparément les sources et puits de méthane. Dans cette thèse, on s'est appuyé sur le modèle ORCHIDEE et les inventaires *a priori* pour donner des éléments qualitatifs sur les sources causant les fluctuations des émissions de méthane totales inversées. Or, les différentes sources de méthane ont des signatures isotopiques bien spécifiques, ce qui peut par conséquent permettre d'identifier plus clairement les types de sources expliquant les variations de la concentration de méthane atmosphérique. La figure 7.4 représente la composition isotopique en $\delta\text{D}(\text{C}_{\text{CH}_4})$ et $\delta^{13}\text{C}_{\text{CH}_4}$ des principales sources de méthane. On remarque que le $\delta^{13}\text{C}_{\text{CH}_4}$ permet de bien distinguer le méthane émis par la combustion de la biomasse puisque la signature isotopique en $\delta^{13}\text{C}_{\text{CH}_4}$ des sources pyrogéniques est bien différente des autres types de sources. La signature isotopique en $\delta\text{D}(\text{C}_{\text{CH}_4})$ permet de distinguer facilement les émissions d'origines biogéniques à celles d'origines thermogéniques.

Les mesures isotopiques ont été exploitées dans différentes études. Notamment, [Houweling et al. \(2000\)](#); [Ferretti et al. \(2005\)](#); [Neef et al. \(2010\)](#) se sont intéressés aux évolutions à long terme des sources de méthane à partir de données isotopiques alors que [Francey et al. \(1999\)](#); [Lassey et al. \(2000\)](#); [Monteil et al. \(2011\)](#) se sont concentrés sur les variations des sources de méthane au cours des dernières décennies. [Quay et al. \(1999\)](#); [Tyler et al. \(2007\)](#) ont, quant à eux, discuté la distribution géographique des sources de méthane à partir de ces mesures isotopiques.

Cependant, il existe de grandes incertitudes sur le fractionnement des sources dans les mesures isotopiques et la modélisation des concentrations isotopiques de méthane reste difficile. Par exemple, [Kai et al. \(2011\)](#) ont expliqué, en exploitant des mesures isotopiques du méthane, la diminution du gradient inter-hémisphérique de $\delta^{13}\text{C}_{\text{CH}_4}$.

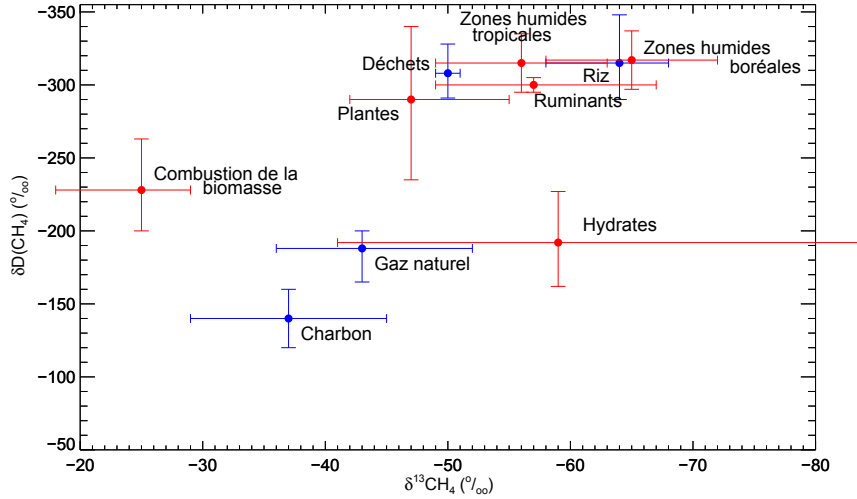


FIGURE 7.4: Représentation de la signature isotopique des principales sources de méthane. Les valeurs de $\delta D(C_{CH_4})$ sont tracées en fonction de $\delta^{13}C_{CH_4}$ en indiquant les incertitudes associées aux valeurs concentrations isotopiques par des barres d'erreurs. Les cercles rouges et bleus sont respectivement relatifs aux émissions naturelles et anthropiques. Figure adaptée de Fischer et al. (2008).

entre le début des années 90 et le début des années 2000 par une diminution des émissions biogéniques liées à la culture du riz. Cependant, Levin et al. (2012) ont démontré qu'en utilisant un jeu de données isotopiques plus complet qu'il n'y avait pas de tendance significative dans le gradient inter-hémisphérique de $\delta^{13}C_{CH_4}$. De plus, il a été montré que l'impact des concentrations isotopiques dans la stratosphère est important sur les concentrations isotopiques troposphériques (McCarthy et al., 2001; Röckmann et al., 2011). Ainsi, une mauvaise représentation des processus physico-chimiques ayant lieu dans la stratosphère peut entraîner des incertitudes non négligeables sur les concentrations isotopiques de méthane dans la troposphère. De ce fait, l'intégration des mesures isotopiques dans le système inverse est prometteur pour déterminer les types de sources responsables des anomalies dans les émissions de méthane, même si de nombreuses difficultés (peu de données, difficulté dans la modélisation des concentrations isotopiques) demeurent.

Au delà d'apporter des contraintes supplémentaires aux problèmes inverses atmosphériques, la prise en compte des mesures isotopiques peut également être très intéressante pour s'affranchir, en partie, des erreurs de transport (Félix Vogel, communication personnelle). En effet, la définition de $\delta^{13}C_{CH_4}$ fait intervenir le rapport entre le ^{13}C et ^{12}C comme le montre l'équation 7.1.

$$\delta^{13}C_{CH_4} = \left[\frac{(^{13}C/^{12}C)_{\text{échantillon}}}{(^{13}C/^{12}C)_{\text{référence}}} - 1 \right] * 1000 \text{ ‰} \quad (7.1)$$

Sachant que les sources de ^{13}C et de ^{12}C sont identiques, on peut donc considérer qu'une erreur impactant la modélisation du transport atmosphérique de ^{12}C affectera aussi ^{13}C . En considérant le rapport entre la concentration de ^{13}C et de ^{12}C , comme c'est le cas dans la définition de $\delta^{13}C_{CH_4}$, il est fort probable que la modélisation de $\delta^{13}C_{CH_4}$ soit moins impactée par les erreurs liées au transport atmosphérique. Ainsi, l'intégration de mesures isotopiques permet également d'aborder d'une autre manière

les erreurs de transport affectant les inversions atmosphériques actuelles.

7.2.4 Toujours plus de données...

Ce travail de thèse a exploité de nombreuses mesures atmosphériques provenant de mesures directes de concentrations de méthane faites à la surface (prélèvements de flacons ou mesures en continu), sur des hautes tours, par des avions (BARCA) ou par des bateaux (bateaux volontaires dans le réseau de la NOAA). Des mesures indirectes à partir de reconstructions de colonnes intégrées de méthane calculées à partir des radiances mesurées par le satellite GOSAT ont également été utilisées. Evidemment, on continuera à utiliser ce genre de mesures dans nos futures inversions atmosphériques. En effet, l'une des perspectives, à court terme, est de prolonger les inversions menées au cours de cette thèse en exploitant les données satellites GOSAT au delà de juin 2011, dans le but d'apporter une connaissance supplémentaire sur la variabilité interannuelle des sources et puits de méthane après 2010 en exploitant ces récentes données.

Au delà de la nécessité indispensable de ces mesures atmosphériques pour contraindre les problèmes inverses, ces mesures constituent également des sources d'informations essentielles pour :

- améliorer la connaissance *a priori* des flux de méthane
- évaluer les capacités des modèles à reproduire ces différents types d'observation

Le besoin d'améliorer les inventaires *a priori* des sources et puits de méthane est un challenge à relever dans les prochaines années. On a déjà évoqué cela précédemment en affirmant que LMDz-NP pouvait être beaucoup plus pénalisé par un mauvais scénario *a priori* que la version LMDz-TD. De plus, malgré le fait que les systèmes inverses actuels sont capables de reproduire les variabilités interannuelles des sources et puits de méthane, une mauvaise information *a priori* peut perturber les bilans des émissions comme c'est le cas dans la section 6.2 où l'on montre que l'estimation *a posteriori* des flux de méthane en Afrique en 2010 est fortement dépendante de l'estimation *a priori*. De plus, le fait que des émissions de méthane locales puissent être très importantes, il est possible que les inventaires *a priori* ne prennent pas en compte ces « super-émetteurs » et que les inversions ne soient pas en mesure de les détecter pour différentes raisons (résolution grossière, observations éparses, etc.). Par exemple, [Nara et al. \(2014\)](#) ont procédé à des mesures directes à bord de bateaux volontaires au large de la Malaisie et ont mis en évidence des émissions localisées très fortes liées aux activités des plateformes pétrolières dans cette zone. Ils ont aussi montré que plusieurs de ces plateformes n'étaient pas répertoriées dans les inventaires d'émissions. Des approches similaires ont permis de détecter également de fortes émissions en Amérique du Nord, très probablement, liées à l'extraction, le transport et l'exploitation du gaz. Une autre caractéristique de la distribution spatiale des émissions de méthane vient du fait que de fortes émissions de méthane se produisent dans certaines zones géographiques peu échantillonnées par les mesures directes des concentrations ce qui rend le bilan des émissions dans ces régions très incertain. Dans ce contexte, les campagnes de mesures BARCA ([Beck et al., 2012](#)) ont permis de mieux quantifier l'ordre de grandeur des émissions dans le bassin de l'Amazonie à deux périodes de l'année.

De plus, les campagnes de mesures fournissent des données très riches en information dans le but de valider les modèles de chimie-transport. Les deux campagnes de mesures BARCA, dont on a montré une partie des résultats dans la section 6.7.2, sont de parfaits exemples de l'apport de mesures atmosphériques pour valider les capacités des modèles dans des zones où la modélisation des processus atmosphériques actifs est difficile. [Beck et al. \(2013\)](#) ont également pu conclure, à travers une comparaison

modèle-observations, que le modèle WRF-Chem n'était pas capable de reproduire les observations lors des jours où la convection était intense. Récemment, la NOAA a développé un nouveau type de mesures des profils verticaux des gaz traces (CO_2 et CH_4) : ce sont les mesures AirCore. Au cours d'une mesure de ce type, un long tube est emmené à haute altitude par un ballon ou un avion et le gaz capté dans le tube au cours de sa descente est analysé une fois que le tube est récupéré au sol. De nombreuses mesures de ce type, qui présentent l'avantage d'être bon marché et pratiques, devraient être disponibles dans les prochaines années, ce qui devrait apporter des données de validation précieuses pour les modèles de chimie-transport.

Finalement, on ne peut qu'encourager la mise en place de nouvelles campagnes et de nouvelles techniques de mesures car les différentes données ainsi obtenues sur la composition de l'atmosphère ne peuvent être que bénéfiques pour l'amélioration des estimations par modélisation inverse.

7.2.5 Une approche multidisciplinaire à poursuivre

L'une des spécificités de la modélisation inverse repose sur le fait de mélanger plusieurs disciplines pour bénéficier de différentes sources d'informations en vue d'obtenir la meilleure estimation des flux de méthane.

La modélisation inverse ne nécessite pas de connaître ou de modéliser les processus biogéochimiques à l'origine des émissions de méthane mais il est très fréquent de comparer les résultats obtenus avec des modèles biogéochimiques (Bousquet et al., 2006; Kirschke et al., 2013). C'est ce que j'ai fait dans la section 6.5.3 lorsque j'ai comparé les résultats des inversions avec les estimations faites par le modèle de végétation, ORCHIDEE. Ces comparaisons apportent des informations très précieuses sur la connaissance du cycle du méthane et la poursuite des collaborations et des comparaisons entre ces différentes approches est essentielle pour mieux comprendre les variabilités spatio-temporelles des flux de méthane.

La modélisation inverse requiert également de discuter avec des experts des mesures atmosphériques pour pouvoir assimiler le mieux possible les différentes données disponibles. C'est d'autant plus vrai lorsqu'on cherche à obtenir le maximum d'informations en mélangeant différents types de données. Les futures inversions seront probablement des inversions mixtes où les différents types de données seront mélangés. Certaines études évoquent également la possibilité d'adopter une approche multi-spectrale pour pouvoir utiliser des données satellites sensibles à différents niveaux de la troposphère (Razavi et al., 2009). De plus, de nouvelles données provenant de différents projets (CarbonSat, MERLIN, Sentinel 5) devraient être disponibles d'ici quelques années et il faudra être en mesure de les assimiler correctement au sein des systèmes inverses. De plus, comme je l'ai évoqué plusieurs fois au cours de ce manuscrit, les discussions entre les experts de la dynamique atmosphérique et les experts de la modélisation du transport atmosphérique sont essentielles pour comprendre et limiter l'impact des erreurs de modélisation sur les futures inversions.

Ainsi, à mon sens, il est et sera essentiel d'aborder l'estimation des sources et puits de méthane par modélisation inverse en poursuivant, ou en mettant en place, une approche multidisciplinaire (approche montante/approche descendante, divers jeux de données, dynamique/transport atmosphérique, etc.). Sur ce point, le fait de bénéficier au sein de la même structure de recherche (l'IPSL, Institut Pierre Simon Laplace) des experts de ces différentes disciplines est un vrai atout pour participer activement à une meilleure compréhension du cycle du méthane dans les années à venir.



Bibliographie

- Adler R. F., G. J. Huffman, A. Chang, R. Ferraro, P.-P. Xie, J. Janowiak, B. Rudolf, U. Schneider, S. Curtis, D. Bolvin, A. Gruber, J. Susskind, P. Arkin, and E. Nelkin. The Version-2 Global Precipitation Climatology Project (GPCP) Monthly Precipitation Analysis (1979–Present), *Journal of Hydrometeorology*, 4(6) :1147–1167, doi : [10.1175/1525-7541\(2003\)004<1147:TVGPCP>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1525-7541(2003)004<1147:TVGPCP>2.0.CO;2), 2003.
- Allan W., H. Struthers, and D. C. Lowe. Methane carbon isotope effects caused by atomic chlorine in the marine boundary layer : Global model results compared with Southern Hemisphere measurements, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, doi : [10.1029/2006JD007369](https://doi.org/10.1029/2006JD007369), 2007.
- Arakawa A. and W. H. Schubert. Interaction of a Cumulus Cloud Ensemble with the Large-Scale Environment, Part I. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 31(3) :674–701, doi : [10.1175/1520-0469\(1974\)031<0674:IOACCE>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0469(1974)031<0674:IOACCE>2.0.CO;2), 1974.
- Ashmore M. R. Assessing the future global impacts of ozone on vegetation, *Plant, Cell & Environment*, 28(8) : 949–964, doi : [10.1111/j.1365-3040.2005.01341.x](https://doi.org/10.1111/j.1365-3040.2005.01341.x), 2005.
- Aydin M., K. R. Verhulst, E. S. Saltzman, M. O. Battle, S. A. Montzka, D. R. Blake, Q. Tang, and M. J. Prather. Recent decreases in fossil-fuel emissions of ethane and methane derived from firm air, *Nature*, 476(7359) : 198–201, doi : [10.1038/nature10352](https://doi.org/10.1038/nature10352), 2011.
- Ayotte, K. W., J. C. McWilliams, M. J. Otte, J. J. Tribbia, and J. C. Wyngaard. An evaluation of neutral and convective planetary boundary-layer parameterizations relative to large eddy simulations, *Boundary-Layer Meteorology*, doi : [10.1007/BF00120078](https://doi.org/10.1007/BF00120078), 1996.
- Baker A. K., T. J. Schuck, C. A. M. Brenninkmeijer, A. Rauthe-Schöch, F. Slemr, P. F. J. van Velthoven, and J. Lelieveld. Estimating the contribution of monsoon-related biogenic production to methane emissions from South Asia using CARIBIC observations, *Geophysical Research Letters*, doi : [10.1029/2012GL051756](https://doi.org/10.1029/2012GL051756), 2012.
- Bastviken D., J. Cole, M. Pace, and L. Tranvik. Methane emissions from lakes : Dependence of lake characteristics, two regional assessments, and a global estimate, *Global Biogeochemical Cycles*, doi : [10.1029/2004GB002238](https://doi.org/10.1029/2004GB002238), 2004.

- Bastviken D., L. J. Tranvik, J. A. Downing, P. M. Crill, and A. Enrich-Prast. Freshwater Methane Emissions Offset the Continental Carbon Sink, *Science*, 331(6013) :50, doi : [10.1126/science.1196808](https://doi.org/10.1126/science.1196808), 2011.
- Beck V., H. Chen, C. Gerbig, P. Bergamaschi, L. Bruhwiler, S. Houweling, T. Röckmann, O. Kolle, J. Steinbach, T. Koch, C. J. Sapart, C. van der Veen, C. Frankenberg, M. O. Andreae, P. Artaxo, K. M. Longo, and S. C. Wofsy. Methane airborne measurements and comparison to global models during BARCA. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, doi : [10.1029/2011JD017345](https://doi.org/10.1029/2011JD017345), 2012.
- Beck V., C. Gerbig, T. Koch, M. M. Bela, K. M. Longo, S. R. Freitas, J. O. Kaplan, C. Prigent, P. Bergamaschi, and M. Heimann. WRF-Chem simulations in the Amazon region during wet and dry season transitions : evaluation of methane models and wetland inundation maps, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(16) :7961–7982, doi : [10.5194/acp-13-7961-2013](https://doi.org/10.5194/acp-13-7961-2013), 2013.
- Belikov D. A., Maksyutov S., Krol M., Fraser A., Rigby M., Bian H., Agusti-Panareda A., Bergmann D., Bousquet P., Cameron-Smith P., Chipperfield M. P., Fortems-Cheiney A., Gloor E., Haynes K., Hess P., Houweling S., Kawa S. R., Law R. M., Loh Z., Meng L., Palmer P. I., Patra P. K., Prinn R. G., Saito R., and C. Wilson. Off-line algorithm for calculation of vertical tracer transport in the troposphere due to deep convection, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13, 1093–1114, doi : [10.5194/acp-13-1093-2013](https://doi.org/10.5194/acp-13-1093-2013), 2013.
- Berchet A., Pison I., Chevallier F., Bousquet P., Conil S., Geever M., Laurila T., Lavrič J., Lopez M., Moncrieff J., Necki J., Ramonet M., Schmidt M., Steinbacher M., and J. Tarniewicz. Towards better error statistics for atmospheric inversions of methane surface fluxes, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(14) :7115–7132, doi : [10.5194/acp-13-7115-2013](https://doi.org/10.5194/acp-13-7115-2013), 2013.
- Bergamaschi P., Krol M., Dentener F., Vermeulen A., Meinhardt F., Graul R., Ramonet M., Peters W., and E. J. Dlugokencky. Inverse modelling of national and European CH₄ emissions using the atmospheric zoom model TM5, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5(9) :2431–2460, doi : [10.5194/acp-5-2431-2005](https://doi.org/10.5194/acp-5-2431-2005), 2005.
- Bergamaschi P., Frankenberg C., Meirink J. F., Krol M., Dentener F., Wagner T., Platt U., Kaplan J. O., Körner S., Heimann M., Dlugokencky E. J., and A. Goede. Satellite cartography of atmospheric methane from SCIAMACHY on board ENVISAT : 2. Evaluation based on inverse model simulations. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, doi : [10.1029/2006JD007268](https://doi.org/10.1029/2006JD007268), 2007.
- Bergamaschi P., Frankenberg C., Meirink J. F., Krol M., Villani M. G., Houweling S., Dentener F., Dlugokencky E. J., J. B. Miller, L. V. Gatti, A. Engel, and I. Levin. Inverse modeling of global and regional CH₄ emissions using SCIAMACHY satellite retrievals, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, doi : [10.1029/2009JD012287](https://doi.org/10.1029/2009JD012287), 2009.
- Bergamaschi P., Krol M., Meirink J. F., Dentener F., Segers A., van Aardenne J., Monni S., Vermeulen A. T., Schmidt M., Ramonet M., Yver C., Meinhardt F., Nisbet E. G., Fisher R. E., O'Doherty S., and E. J. Dlugokencky. Inverse modeling of European CH₄ emissions 2001-2006, *Journal of Geophysical Research*, 115, D22309, doi : [10.1029/2010JD014180](https://doi.org/10.1029/2010JD014180), 2010.
- Bergamaschi P., Houweling S., Segers A., Krol M., Frankenberg C., Scheepmaker R. A., Dlugokencky E. J., Wofsy S. C., Kort E. A., Sweeney C., Schuck T., Brenninkmeijer C., Chen H., Beck V., and C. Gerbig. Atmospheric CH₄ in the first decade of the

- 21st century : Inverse modeling analysis using SCIAMACHY satellite retrievals and NOAA surface measurements, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 118 (13) :7350–7369, doi : [10.1002/jgrd.50480](https://doi.org/10.1002/jgrd.50480), 2013.
- Blake D. R., E. W. Mayer, S. C. Tyler, Y. Makide, D. C. Montague, and F. S. Rowland. Global increase in atmospheric methane concentrations between 1978 and 1980, *Geophysical Research Letters*, 9(4) :477–480, doi : [10.1029/GL009i004p00477](https://doi.org/10.1029/GL009i004p00477), 1982.
- Bloom A., J. Lee-Taylor, S. Madronich, D. J. Messenger, P. I. Palmer, D. S. Reay, and A. R. McLeod. Global methane emission estimates from ultraviolet irradiation of terrestrial plant foliage, *New Phytologist*, 187(2) :417–425, doi : [10.1111/j.1469-8137.2010.03259.x](https://doi.org/10.1111/j.1469-8137.2010.03259.x), 2010.
- Bougeault P., and P. Lacarrère. Parameterization of orography-induced turbulence in a meso-beta scale model, *Monthly Weather Review*, 117, 1870–1888, doi : [10.1175/1520-0493\(1989\)117<1872:POOITI>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0493(1989)117<1872:POOITI>2.0.CO;2), 1989.
- Bousquet P., P. Ciais, P. Peylin, M. Ramonet, and P. Monfray. Inverse modeling of annual atmospheric CO₂ sources and sinks : 1. Method and control inversion, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 104(D21) :26161–26178, doi : [10.1029/1999JD900342](https://doi.org/10.1029/1999JD900342), 1999.
- Bousquet P., D. A. Hauglustaine, P. Peylin, C. Carouge, and P. Ciais. Two decades of OH variability as inferred by an inversion of atmospheric transport and chemistry of methyl chloroform, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5(10) :2635–2656, doi : [10.5194/acp-5-2635-2005](https://doi.org/10.5194/acp-5-2635-2005), 2005.
- Bousquet P., Ciais P., Miller J. B., Dlugokencky E. J., Hauglustaine D. A., Prigent C., Van der Werf G. R., Peylin P., Brunke E.-G., Carouge C., Langenfelds R. L., Lathiere J., Papa F., Ramonet M., Schmidt M., Steele L. P., Tyler S. C., and J. White. Contribution of anthropogenic and natural sources to atmospheric methane variability, *Nature*, 443(7110) :439–443, doi : [10.1038/nature05132](https://doi.org/10.1038/nature05132), 2006.
- Bousquet P., Ringeval B., Pison I., Dlugokencky E. J., Brunke E.-G., Carouge C., Chevallier F., Fortems-Cheiney A., Frankenberg C., Hauglustaine D. A., Krummel P. B., Langenfelds R. L., Ramonet M., Schmidt M., Steele L. P., Szopa S., Yver C., Viovy N., and P. Ciais. Source attribution of the changes in atmospheric methane for 2006–2008, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(8) :3689–3700, doi : [10.5194/acp-11-3689-2011](https://doi.org/10.5194/acp-11-3689-2011), 2011.
- Brasseur G. P., D. A. Hauglustaine, S. Walters, P. J. Rasch, J.-F. Müller, C. Granier, and X. X. Tie. MOZART, a global chemical transport model for ozone and related chemical tracers : 1. Model description, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 103 (D21) :28265–28289, doi : [10.1029/98JD02397](https://doi.org/10.1029/98JD02397), 1998.
- Bregman A., Krol M.C., Teyssède H., Norton W. A., Iwi A., Chipperfield M., Pitari G., Sundet J.K., and J. Lelieveld. Chemistry-transport model comparison with ozone observations in the midlatitude lowermost stratosphere, *Journal of Geophysical Research*, 106(D15), 17479–17496, doi : [10.1029/2000JD900752](https://doi.org/10.1029/2000JD900752), 2001.
- Brown A. R., Cederwall R. T., Chlond A., Duynkerke P. G., Golaz J.-C., Khairoutdinov M., Lewellen D. C., Lock A. P., Macvean M. K., Moeng C.-H., Neggers R. A. J., Siebesma A. P., and B. Stevens. Large-eddy simulation of the diurnal cycle of shallow cumulus convection over land, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 128, 1075–1093, doi : [10.1256/003590002320373210](https://doi.org/10.1256/003590002320373210), 2002.

- Bruhwiller L., A. M. Michalak, and P. P. Tans. Spatial and temporal resolution of carbon flux estimates for 1983–2002, *Biogeosciences*, 8(5) :1309–1331, doi : [10.5194/bg-8-1309-2011](https://doi.org/10.5194/bg-8-1309-2011), 2011.
- Bruhwiller L., E. Dlugokencky, K. Masarie, M. Ishizawa, A. Andrews, J. Miller, C. Sweeney, P. Tans, and D. Worthy. CarbonTracker-CH₄ : an assimilation system for estimating emissions of atmospheric methane, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(16) : 8269–8293, doi : [10.5194/acp-14-8269-2014](https://doi.org/10.5194/acp-14-8269-2014), 2014.
- Buchwitz M., de Beek R., Burrows J. P., Bovensmann H., Warneke T., Notholt J., Meirink J. F., Goede A. P. H., Bergamaschi P., Körner S., Heimann M., and A. Schulz. Atmospheric methane and carbon dioxide from SCIAMACHY satellite data : initial comparison with chemistry and transport models, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5(4) :941–962, doi : [10.5194/acp-5-941-2005](https://doi.org/10.5194/acp-5-941-2005), 2005.
- Carouge C., Bousquet P., Peylin P., Rayner P. J., and P. Ciais. What can we learn from European continuous atmospheric CO₂ measurements to quantify regional fluxes – Part 1 : Potential of the 2001 network. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(6) : 3107–3117, doi : [10.5194/acp-10-3107-2010](https://doi.org/10.5194/acp-10-3107-2010), 2010.
- Cathles III L. M., Brown L., Taam M., and A. Hunter. A commentary on “The greenhouse-gas footprint of natural gas in shale formations” by R.W. Howarth, R. Santoro, and Anthony Ingraffea, *Climatic Change*, 113(2) :525–535, doi : [10.1007/s10584-011-0333-0](https://doi.org/10.1007/s10584-011-0333-0), 2012.
- Chappellaz J., Blunier T., Raynaud D., Barnola J. M., Schwander J., and B. Stauffert. Synchronous changes in atmospheric CH₄ and Greenland climate between 40 and 8 kyr BP, doi : [10.1038/366443a0](https://doi.org/10.1038/366443a0), 1993.
- Chappellaz J., Blunier T., Kints S., Dällenbach A., Barnola J.-M., Schwander J., Raynaud D., and B. Stauffer. Changes in the atmospheric CH₄ gradient between Greenland and Antarctica during the Holocene, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* (1984–2012), 102(D13) :15987–15997, doi : [10.1029/97JD01017](https://doi.org/10.1029/97JD01017), 1997.
- Chen B., Chen J. M. and J. Liu. A Vertical Diffusion Scheme to estimate the atmospheric rectifier effect, *Journal of Geophysical Research*, 109, D04306, doi : [10.1029/2003JD003925](https://doi.org/10.1029/2003JD003925), 2004.
- Chen, Y.-H. and R. G. Prinn. Estimation of atmospheric methane emissions between 1996 and 2001 using a three-dimensional global chemical transport model, *Journal of Geophysical Research*, 111, 1–25, doi : [10.1029/2005JD006058](https://doi.org/10.1029/2005JD006058), 2006.
- Chevallier F., Fisher M., Peylin P., Serrar S., Bousquet P., Bréon F.-M., Chédin A., and P. Ciais. Inferring CO₂ sources and sinks from satellite observations : Method and application to TOVS data, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, doi : [10.1029/2005JD006390](https://doi.org/10.1029/2005JD006390), 2005.
- Chevallier F., Bréon F.-M., and P. J. Rayner. Contribution of the Orbiting Carbon Observatory to the estimation of CO₂ sources and sinks : Theoretical study in a variational data assimilation framework, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* (1984–2012), 112(D9), doi : [10.1029/2006JD007375](https://doi.org/10.1029/2006JD007375), 2007.
- Chevallier F., Feng L., Bösch H., Palmer P. I., and P. J. Rayner. On the impact of transport model errors for the estimation of CO₂ surface fluxes from GOSAT observations, *Geophysical Research Letters*, 37, L21803, doi : [10.1029/2010GL044652](https://doi.org/10.1029/2010GL044652), 2010.

- Chevallier F. On the parallelization of atmospheric inversions of CO₂ surface fluxes within a variational framework, *Geoscientific Model Development*, 6(3) :783–790, doi : [10.5194/gmd-6-783-2013](https://doi.org/10.5194/gmd-6-783-2013), 2013.
- Chevallier F., P. I. Palmer, L. Feng, H. Boesch, C. W. O'Dell, and P. Bousquet. Toward robust and consistent regional CO₂ flux estimates from in-situ and spaceborne measurements of atmospheric CO₂. *Geophysical Research Letters*, 41(3) :1065–1070, doi : [10.1002/2013GL058772](https://doi.org/10.1002/2013GL058772), 2014.
- Ciais P., Sabine C., Govindasamy B., Bopp L., Brovkin V., Canadell J., Chhabra A., DeFries R., Galloway J., Heimann M., Jones C., Le Quéré C., Myneni R., Piao S., and P. Thornton. Chapter 6 : Carbon and Other Biogeochemical Cycles, *Climate Change 2013 The Physical Science Basis*, edited by : Stocker, T., Qin, D., and Plattner, G.-K., Cambridge University Press, Cambridge, 2013.
- Cressot C., Chevallier F., Bousquet P., Crevoisier C., Dlugokencky E. J., Fortems-Cheiney A., Frankenberg C., Parker R., Pison I., Scheepmaker R. A., Montzka S. A., Krummel P. B., Steele L. P., and R. L. Langenfelds. On the consistency between global and regional methane emissions inferred from SCIAMACHY, TANSO-FTS, IASI and surface measurements, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(2) :577–592, doi : [10.5194/acp-14-577-2014](https://doi.org/10.5194/acp-14-577-2014), 2014.
- Crevoisier C., D. Nobileau, R. Armante, L. Crépeau, T. Machida, Y. Sawa, H. Matsueda, T. Schuck, T. Thonat, J. Pernin, N. A. Scott, and A. Chédin. The 2007–2011 evolution of tropical methane in the mid-troposphere as seen from space by MetOp-A/IASI, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(8) :4279–4289, doi : [10.5194/acp-13-4279-2013](https://doi.org/10.5194/acp-13-4279-2013), 2013.
- Couvreux F., Hourdin F., and C. Rio. Resolved versus parametrized boundary-layer plumes. Part I : A parametrization-oriented conditional sampling in large-eddy simulations, *Boundary Layer Meteorology*, 134, 441–458, doi : [10.1007/s10546-009-9456-5](https://doi.org/10.1007/s10546-009-9456-5), 2010.
- Cunnold D. M., L. P. Steele, P. J. Fraser, P. G. Simmonds, R. G. Prinn, R. F. Weiss, L. W. Porter, S. O'Doherty, R. L. Langenfelds, P. B. Krummel, H. J. Wang, L. Emmons, X. X. Tie, and E. J. Dlugokencky. In situ measurements of atmospheric methane at GAGE/AGAGE sites during 1985–2000 and resulting source inferences, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, doi : [10.1029/2001JD001226](https://doi.org/10.1029/2001JD001226), 2002.
- Curry C. L. Modeling the soil consumption of atmospheric methane at the global scale, *Global biogeochemical cycles*, 21(4), doi : [10.1029/2006GB002818](https://doi.org/10.1029/2006GB002818), 2007.
- Deardorff J. W. The counter-gradient heat flux in the lower atmosphere and in the laboratory, *Journal of the Atmospheric Sciences*, doi : [10.1175/1520-0469\(1966\)023<0503:TCGHFI>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0469(1966)023<0503:TCGHFI>2.0.CO;2), 1966.
- Deardorff J. W. Theoretical expression for the countergradient vertical heat flux, *Journal of Geophysical Research*, 77(30) :5900–5904, doi : [10.1029/JC077i030p05900](https://doi.org/10.1029/JC077i030p05900), 1972.
- Denning A. S., Fung I. Y., and D. A. Randall. Latitudinal gradient of atmospheric CO₂ due to seasonal exchange with land biota, *Nature*, 376, 240–243, doi : [10.1038/376240a0](https://doi.org/10.1038/376240a0), 1995.

- Denning A. S., Holzer M., Gurney K. R., Heimann M., Law R. M., Rayner P. J., Fung I. Y., Fan S.-M., Taguchi S., Friedlingstein P., Balkanski Y., Taylor J., Maiss M., and I. Levin. Three-dimensional transport and concentration of SF₆. A model intercomparison study (TransCom 2), *Tellus B*, 51, 266–297, doi : 10.1034/j.1600-0889.1999.00012.x, 1999.
- Desroziers G., Berre L., Chapnik B., and P. Poli. Diagnosis of observation, background and analysis-error statistics in observation space, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 131(613) :3385–3396, doi : 10.1256/qj.05.108, 2005.
- Dlugokencky E. J., Steele L. P., Lang P. M., and K. A. Masarie. The growth rate and distribution of atmospheric methane, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* (1984–2012), 99(D8) :17021–17043, doi : 10.1029/94JD01245, 1994.
- Dlugokencky E. J., Dutton E. G., Novelli P. C., Tans P. P., Masarie K. A., Lantz K. O., and S. Madronich. Changes in CH₄ and CO growth rates after the eruption of Mt. Pinatubo and their link with changes in tropical tropospheric UV flux, *Geophysical Research Letters*, 23(20) :2761–2764, doi : 10.1029/96GL02638, 1996.
- Dlugokencky E. J., Houweling S., Bruhwiler L., Masarie K. A., Lang P. M., Miller J. B., and P. P. Tans. Atmospheric methane levels off : Temporary pause or a new steady-state ?, *Geophysical Research Letters*, doi : 10.1029/2003GL018126, 2003.
- Dlugokencky E. J., Bruhwiler L., White J. W. C., Emmons L. K., Novelli P. C., Montzka S. A., Masarie K. A., Lang P. M., Crotwell A. M., Miller J. B., and L. V. Gatti. Observational constraints on recent increases in the atmospheric CH₄ burden, *Geophysical Research Letters*, doi : 10.1029/2009GL039780, 2009.
- Dlugokencky E. J., Nisbet E. G., Fisher R., and D. Lowry. Global atmospheric methane : budget, changes and dangers, *Philosophical Transactions of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 369(1643) :2058–2072, doi : 10.1098/rsta.2010.0341, 2011.
- Dueck T. A., De Visser R., Poorter H., Persijn S., Gorissen A., De Visser W., Schapendonk A., Verhagen J., Snel J., Harren J. M., Ngai K. Y., Verstappen F., Bouwmeester H., Voesenek L., and A. Van Der Werf. No evidence for substantial aerobic methane emission by terrestrial plants : a 13C-labelling approach, *New Phytologist*, 175(1) : 29–35, doi : 10.1111/j.1469-8137.2007.02103.x, 2007.
- Dufresne J., Foujols M.-A., Denvil S., and A. Caubel. Climate change projections using the IPSL-CM5 Earth System Model : from CMIP3 to CMIP5 *Climate Dynamics*, doi : 10.1007/s00382-012-1636-1, 2013.
- Dutton E. G. and J. R. Christy. Solar radiative forcing at selected locations and evidence for global lower tropospheric cooling following the eruptions of El Chichón and Pinatubo, *Geophysical Research Letters*, 19(23) :2313–2316, doi : 10.1029/92GL02495, 1992.
- Emanuel K. A. A Scheme for Representing Cumulus Convection in Large-Scale Models, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 48(21) :2313–2329, doi : 10.1175/1520-0469(1991)048<2313:ASFRCC>2.0.CO;2, 1991.
- Emmons L. K., S. Walters, P. G. Hess, J.-F. Lamarque, G. G. Pfister, D. Fillmore, C. Granier, A. Guenther, D. Kinnison, T. Laepple, J. Orlando, X. Tie, G. Tyndall, C. Wiedinmyer, S. L. Baughcum, and S. Kloster. Description and evaluation of the Model

- for Ozone and Related chemical Tracers, version 4 (MOZART-4), *Geoscientific Model Development*, 3(1) :43–67, doi : [10.5194/gmd-3-43-2010](https://doi.org/10.5194/gmd-3-43-2010), 2010.
- Enting, I. G. Inverse problems in atmospheric constituent transport, CUP, Cambridge, UK, 2002.
- Environmental Protection Agency, EPA. Global Anthropogenic Non-CO₂ Greenhouse Gas Emissions : 1990-2030., Revised December 2012 Report, Washington, DC 20460.
- Evensen G. Sequential data assimilation with a nonlinear quasi-geostrophic model using Monte Carlo methods to forecast error statistics, *Journal of Geophysical Research : Oceans*, 99(C5) :10143–10162, doi : [10.1029/94JC00572](https://doi.org/10.1029/94JC00572), 1994.
- Fan Z., Neff J. C., Harden J. W., and K. P. Wickland. Boreal soil carbon dynamics under a changing climate : A model inversion approach. *Journal of Geophysical Research : Biogeosciences*, doi : [10.1029/2008JG000723](https://doi.org/10.1029/2008JG000723), 2008.
- Ferretti D. F., J. B. Miller, J. W. C. White, D. M. Etheridge, K. R. Lassey, D. C. Lowe, C. M. MacFarling Meure, M. F. Dreier, C. M. Trudinger, T. D. van Ommen, and R. L. Langenfelds. Unexpected Changes to the Global Methane Budget over the Past 2000 Years, *Science*, 309(5741) :1714–1717, doi : [10.1126/science.1115193](https://doi.org/10.1126/science.1115193), 2005.
- Fiore A. M., D. J. Jacob, B. D. Field, D. G. Streets, S. D. Fernandes, and C. Jang. Linking ozone pollution and climate change : The case for controlling methane, *Geophysical Research Letters*, 29(19) :24–25, doi : [10.1029/2002GL015601](https://doi.org/10.1029/2002GL015601), 2002.
- Fischer H., Behrens M., Bock M., Richter U., Schmitt J., Louergue L., Chappellaz J., Spahni R., Blunier T., Leuenberger M., and others. Changing boreal methane sources and constant biomass burning during the last termination, *Nature*, 452(7189) :864–867, doi : [10.1038/nature06825](https://doi.org/10.1038/nature06825), 2008.
- Fortems-Cheiney A., F. Chevallier, I. Pison, P. Bousquet, S. Szopa, M. N. Deeter, and C. Clerbaux. Ten years of CO emissions as seen from Measurements of Pollution in the Troposphere (MOPITT), *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 116(D5), doi : [10.1029/2010JD014416](https://doi.org/10.1029/2010JD014416), 2011.
- Fortems-Cheiney A., F. Chevallier, I. Pison, P. Bousquet, M. Saunois, S. Szopa, C. Cressot, T. P. Kurosu, K. Chance, and A. Fried. The formaldehyde budget as seen by a global-scale multi-constraint and multi-species inversion system, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12(15) :6699–6721, doi : [10.5194/acp-12-6699-2012](https://doi.org/10.5194/acp-12-6699-2012), 2012.
- Fortems-Cheiney A., F. Chevallier, M. Saunois, I. Pison, P. Bousquet, C. Cressot, H. J. Wang, Y. Yokouchi, and F. Artuso. HCFC-22 emissions at global and regional scales between 1995 and 2010 : Trends and variability, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 118(13) :7379–7388, doi : [10.1002/jgrd.50544](https://doi.org/10.1002/jgrd.50544), 2013.
- Francey R. J., M. R. Manning, C. E. Allison, S. A. Coram, D. M. Etheridge, R. L. Langenfelds, D. C. Lowe, and L. P. Steele. A history of $\delta^{13}\text{C}$ in atmospheric CH₄ from the Cape Grim Air Archive and Antarctic firn air, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 104(D19) :23631–23643, doi : [10.1029/1999JD900357](https://doi.org/10.1029/1999JD900357), 1999.
- Frankenberg C., Meirink J. F., van Weele M., Platt U., and T. Wagner. Assessing Methane Emissions from Global Space-Borne Observations. *Science*, 308(5724) :1010–1014, doi : [10.1126/science.1106644](https://doi.org/10.1126/science.1106644), 2005.

- Frankenberg C., Bergamaschi P., Butz A., Houweling S., Meirink J. F., Notholt J., Petersen A. K., Schrijver H., Warneke T., and I. Aben. Tropical methane emissions : A revised view from SCIAMACHY onboard ENVISAT, *Geophysical Research Letters*, doi : [10.1029/2008GL034300](https://doi.org/10.1029/2008GL034300), 2008.
- Fraser A., C. Chan Miller, P. I. Palmer, N. M. Deutscher, N. B. Jones, and D. W. T. Griffith. The Australian methane budget : Interpreting surface and train-borne measurements using a chemistry transport model, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, doi : [10.1029/2011JD015964](https://doi.org/10.1029/2011JD015964) 2011.
- Ganesan A. L., Rigby M., Zammit-Mangion A., Manning A. J., Prinn R. G., Fraser P. J., Harth C. M., Kim K.-R., Krummel P. B., Li S., Mühle J., O'Doherty S. J., Park S., Salameh P. K., Steele L. P., and R. F. Weiss. Characterization of uncertainties in atmospheric trace gas inversions using hierarchical Bayesian methods, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(8) :3855–3864, doi : [10.5194/acp-14-3855-2014](https://doi.org/10.5194/acp-14-3855-2014), 2014.
- Galmarini S. Stable nocturnal boundary layers : a comparison of one-dimensional and large-eddy simulation models, *Boundary-Layer Meteorology*, pp. 181–210, doi : [10.1023/A:1001158702252](https://doi.org/10.1023/A:1001158702252), 1998.
- Geels C., M. Gloor, and P. Ciais. Comparing atmospheric transport models for future regional inversions over Europe. Part 1 : mapping the atmospheric CO₂ signals, *Atmospheric Chemistry and Physics*, pages 3709–3756, doi : [10.5194/acp-7-3461-2007](https://doi.org/10.5194/acp-7-3461-2007), 2007.
- Genthon C. and A. Armengaud. ²²²Rn as a comparative tracer of transport and mixing general in two circulation models of the atmosphere, *Journal of Geophysical Research*, 2849–2866, doi : [10.1029/94JD02846](https://doi.org/10.1029/94JD02846), 1995.
- Gilbert J.-C. and C. Lemaréchal. Some numerical experiments with variable-storage quasi-Newton algorithms, *Mathematical programming*, 45(1-3) :407–435, doi : [10.1007/BF01589113](https://doi.org/10.1007/BF01589113), 1989.
- Grandpeix J.-Y., Phillips V., and R. Tailleux. Improved mixing representation in Emanuel's convection scheme, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 130 (604) :3207–3222, doi : [10.1256/qj.03.144](https://doi.org/10.1256/qj.03.144), 2004.
- Grandpeix J.-Y. and J.-P. Lafore. A Density Current Parameterization Coupled with Emanuel's Convection Scheme. Part I : The Models, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 67(4) :881–897, doi : [10.1175/2009JAS3044.1](https://doi.org/10.1175/2009JAS3044.1), 2010.
- Grandpeix J.-Y., J.-P. Lafore, and F. Cheruy. A Density Current Parameterization Coupled with Emanuel's Convection Scheme. Part II : 1D Simulations, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 67(4) :898–922, doi : [10.1175/2009JAS3045.1](https://doi.org/10.1175/2009JAS3045.1), 2009.
- Grooß J. -U. and J. M. Russell III. Technical note : A stratospheric climatology for O₃, H₂O, CH₄, NO_x, HCl and HF derived from HALOE measurements., *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5(10) :2797–2807, doi : [10.5194/acp-5-2797-2005](https://doi.org/10.5194/acp-5-2797-2005), 2005.
- Gurney K. R., Law R. M., Denning A. S., Rayner P. J., Baker D., Bousquet P., Bruhwiler L., Chen Y.-H., Ciais P., Fan S., Fung I. Y., Gloor M., Heimann M., Higuchi K., John J., Maki T., Maksyutov S., Masarie K., Peylin P., Prather M., Pak B. C., Randerson J., Sarmiento J., Taguchi S., Takahashi T., and C.-W. Yuen. Towards robust regional estimates of CO₂ sources and sinks using atmospheric transport models, *Nature*, 415 (6872) :626–630, doi : [10.1038/415626a](https://doi.org/10.1038/415626a), 2002.

- Gurney K. R., Law R. M., Denning A. S., Rayner P. J., Baker D., Bousquet P., Bruhwiler L., Chen Y.-H., Ciais P., Fan S., Fung I. Y., Gloor M., Heimann M., Higuchi K., John J., Kowalczyk E., Maki T., Maksyutov S., Peylin P., Prather M., Pak B. C., Sarmiento J., Taguchi S., Takahashi T. and C.-W. Yuen. TransCom 3 CO₂ inversion intercomparison : 1. Annual mean control results and sensitivity to transport and prior flux information, *Tellus B*, 55 : 555-579, doi : [10.1034/j.1600-0889.2003.00049.x](https://doi.org/10.1034/j.1600-0889.2003.00049.x), 2003.
- Haefelin M., F. Angelini, Y. Morille, G. Martucci, S. Frey, G. P. Gobbi, S. Lolli, C. D. O'Dowd, L. Sauvage, I. Xueref-Rémy, B. Wastine, and D. G. Feist. Evaluation of Mixing-Height Retrievals from Automatic Profiling Lidars and Ceilometers in View of Future Integrated Networks in Europe. *Boundary-Layer Meteorology*, 143(1) :49–75, doi : [10.1007/s10546-011-9643-z](https://doi.org/10.1007/s10546-011-9643-z), 2012.
- Hauglustaine D. A., F. Hourdin, L. Jourdain, M.-A. Filiberti, S. Walters, J.-F. Lamarque, and E. A. Holland. Interactive chemistry in the Laboratoire de Météorologie Dynamique general circulation model : Description and background tropospheric chemistry evaluation, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, doi : [10.1029/2003JD003957](https://doi.org/10.1029/2003JD003957), 2004.
- Hein R., Crutzen P. J., and M. Heimann. An inverse modeling approach to investigate the global atmospheric methane cycle, *Global Biogeochemical Cycles*, 11, 43, doi : [10.1029/96GB03043](https://doi.org/10.1029/96GB03043), 1997.
- Heinrich P. and A. Jamelot. Atmospheric transport simulation of ²¹⁰Pb and ⁷Be by the LMDz general circulation model and sensitivity to convection and scavenging parameterization, *Journal Atmospheric Research*, 101, 54-66, doi : [10.1016/j.atmosres.2011.01.008](https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2011.01.008), 2011.
- Hodson E. L., Poulter B., Zimmermann N. E., Prigent C., and J. O. Kaplan. The El Niño–Southern Oscillation and wetland methane interannual variability, *Geophysical Research Letters*, doi : [10.1029/2011GL046861](https://doi.org/10.1029/2011GL046861), 2011.
- Holton J., P. Haynes, and M. McIntyre. Stratosphere-troposphere exchange, *Reviews of Geophysics*, 403–439, doi : [10.1029/95RG02097](https://doi.org/10.1029/95RG02097), 1995.
- Houghton J. T. and G. J. Jenkins. Ephraums. JJ (eds.), 1990 : Climate Change : The IPCC Scientific Assessment, 1990.
- Hourdin F. and A. Armengaud. The Use of Finite-Volume Methods for Atmospheric Advection of Trace Species. Part I : Test of Various Formulations in a General Circulation Model, *Monthly Weather Review*, 127(5) :822–837, doi : [10.1175/1520-0493\(1999\)127<0822:TUOFVM>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0493(1999)127<0822:TUOFVM>2.0.CO;2), 1999.
- Hourdin F., F. Couvreux, and L. Menut. Parameterization of the Dry Convective Boundary Layer Based on a Mass Flux Representation of Thermals, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 59(6) :1105–1123, doi : [10.1175/1520-0469\(2002\)059<1105:POTDCB>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0469(2002)059<1105:POTDCB>2.0.CO;2), 2002.
- Hourdin F., Musat I., Bony S., Braconnot P., Codron F., Dufresne J.-L., Fairhead L., Filiberti M.-A., Friedlingstein P., Grandpeix J.-Y., Krinner G., LeVan P., Li Z.-X., and F. Lott. The LMDZ4 general circulation model : climate performance and sensitivity to parametrized physics with emphasis on tropical convection, *Climate Dynamics*, 27 (7-8) :787–813, doi : [10.1007/s00382-006-0158-0](https://doi.org/10.1007/s00382-006-0158-0), 2006.

- Hourdin F., M.-A. Foujols, F. Codron, V. Guemas, J.-L. Dufresne, S. Bony, S. Denvil, L. Guez, F. Lott, J. Ghattas, P. Braconnot, O. Marti, Y. Meurdesoif, and L. Bopp. Impact of the LMDZ atmospheric grid configuration on the climate and sensitivity of the IPSL-CM5A coupled model, *Climate Dynamics*, 40(9-10) :2167–2192, doi : [10.1007/s00382-012-1411-3](https://doi.org/10.1007/s00382-012-1411-3), 2012a.
- Hourdin F., J.-Y. Grandpeix, C. Rio, S. Bony, A. Jam, F. Cheruy, N. Rochetin, L. Fairhead, A. Idelkadi, I. Musat, J.-L. Dufresne, A. Lahellec, M.-P. Lefebvre, and R. Roehrig. LMDZ5B : the atmospheric component of the IPSL climate model with revisited parameterizations for clouds and convection, *Climate Dynamics*, 40(9-10) :2193–2222, doi : [10.1007/s00382-012-1343-y](https://doi.org/10.1007/s00382-012-1343-y), 2012b.
- Houweling S., Kaminski T., Dentener F., Lelieveld J., and M. Heimann. Inverse modeling of methane sources and sinks using the adjoint of a global transport model, *Journal of Geophysical Research*, 104, 26137, doi : [10.1029/1999JD900428](https://doi.org/10.1029/1999JD900428), 1999.
- Houweling S., F. Dentener, and J. Lelieveld. Simulation of preindustrial atmospheric methane to constrain the global source strength of natural wetlands, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 105(D13) :17243–17255, doi : [10.1029/2000JD900193](https://doi.org/10.1029/2000JD900193), 2000.
- Houweling S., T. Röckmann, I. Aben, F. Keppler, M. Krol, J. F. Meirink, E. J. Dlugokencky, and C. Frankenberg. Atmospheric constraints on global emissions of methane from plants, *Geophysical Research Letters*, doi : [10.1029/2006GL026162](https://doi.org/10.1029/2006GL026162), 2006.
- Houweling S., Aben I., Breon F.-M., Chevallier F., Deutscher N., Engelen R., Gerbig C., Griffith D., Hungershofer K., Macatangay R., Marshall J., Notholt J., Peters W., and S. Serrar. The importance of transport model uncertainties for the estimation of CO₂ sources and sinks using satellite measurements, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10, 9981–9992, doi : [10.5194/acp-10-9981-2010](https://doi.org/10.5194/acp-10-9981-2010), 2010.
- Houweling S., Badawy B., Baker D. F., Basu S., Belikov D., Bergamaschi P., Bousquet P., Broquet G., Butler T., Canadell J. P., and others. Iconic CO₂ time series at risk, *Science (New York, NY)*, 337(6098) :1038, doi : [10.1126/science.337.6098.1038-b](https://doi.org/10.1126/science.337.6098.1038-b), 2012.
- Houweling S., M. Krol, P. Bergamaschi, C. Frankenberg, E. J. Dlugokencky, I. Morino, J. Notholt, V. Sherlock, D. Wunch, V. Beck, C. Gerbig, H. Chen, E. A. Kort, T. Röckmann, and I. Aben. A multi-year methane inversion using SCIAMACHY, accounting for systematic errors using TCCON measurements, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(8) :3991–4012, doi : [10.5194/acp-14-3991-2014](https://doi.org/10.5194/acp-14-3991-2014), 2014.
- Howarth R. W., Renee Santoro R., and A. Ingraffea. Methane and the greenhouse-gas footprint of natural gas from shale formations, *Climatic Change*, 106(4) :679–690, doi : [10.1007/s10584-011-0061-5](https://doi.org/10.1007/s10584-011-0061-5), 2011.
- Huffman G. J., Bolvin D. T., Nelkin E. J., Wolff D. B., Adler R. F., G. Gu, Y. Hong, K. P. Bowman, and E. F. Stocker. The TRMM Multisatellite Precipitation Analysis (TMPA) : Quasi-Global, Multiyear, Combined-Sensor Precipitation Estimates at Fine Scales, *Journal of Hydrometeorology*, 8(1) :38–55, doi : [10.1175/JHM560.1](https://doi.org/10.1175/JHM560.1), 2007.
- IPCC, 2013 : Summary for Policymakers. In : Climate Change 2013 : The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. [Stocker, T.F., D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S.K. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex and P.M. Midgley (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA.

- Isaksen I. S. A., Gauss M., Myhre G., Walter Anthony K. M., and C. Ruppel. Strong atmospheric chemistry feedback to climate warming from Arctic methane emissions, *Global Biogeochemical Cycles*, doi : [10.1029/2010GB003845](https://doi.org/10.1029/2010GB003845), 2011.
- Jacob D., Prather M., Rasch P., and R. Shia. Evaluation and intercomparison of global atmospheric transport models using ^{222}Rn and other short lived tracers, *Journal of Geophysical Research*, 102, 5953–5970, doi : [10.1029/96JD02955](https://doi.org/10.1029/96JD02955), 1997.
- Jacob D. J. *Introduction to atmospheric chemistry*. Princeton University Press, 1999.
- Fuu Ming Kai, Stanley C Tyler, James T Randerson, and Donald R Blake. Reduced methane growth rate explained by decreased Northern Hemisphere microbial sources, *Nature*, 476(7359) :194–197, doi : [10.1038/nature10259](https://doi.org/10.1038/nature10259), 2011.
- Kaminski T., Rayner P. J., Heimann M., and I. G. Enting. On aggregation errors in atmospheric transport inversions, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 106 (D5) :4703–4715, doi : [10.1029/2000JD900581](https://doi.org/10.1029/2000JD900581), 2001.
- Karion A., Sweeney C., Pétron G., Frost G., Hardesty R. M., Kofler J., Miller B. R., Newberger T., Wolter S., Banta R., Brewer A., Dlugokencky E., Lang P., Montzka S. A., Schnell R., Tans P., Trainer M., Zamora R., and S. Conley. Methane emissions estimate from airborne measurements over a western United States natural gas field, *Geophysical Research Letters*, 40(16) :4393–4397, doi : [10.1002/grl.50811](https://doi.org/10.1002/grl.50811), 2013.
- Karstens U., Schwingshackl C., Schmidthusen D., and Levin I. : A process-based ^{222}Rn flux map for Europe and its validation by long-term observations., Manuscript in preparation, 2014.
- Keeling C. D. The Concentration and Isotopic Abundances of Carbon Dioxide in the Atmosphere, *Tellus*, 12(2) :200–203, doi : [10.1111/j.2153-3490.1960.tb01300.x](https://doi.org/10.1111/j.2153-3490.1960.tb01300.x), 1960.
- Keppler F., Hamilton J. T. G., Braß M., and T. Rockmann. Methane emissions from terrestrial plants under aerobic conditions, *Nature*, 439(7073) :187–191, doi : [10.1038/nature04420](https://doi.org/10.1038/nature04420), 2006.
- Kiemle C., Quatrevalet M., Ehret G., Amediek A., Fix A., and M. Wirth. Sensitivity studies for a space-based methane lidar mission, *Atmospheric Measurement Techniques*, 4(10) :2195–2211, doi : [10.5194/amt-4-2195-2011](https://doi.org/10.5194/amt-4-2195-2011), 2011.
- Kirschke S., Bousquet P., Ciais P., Saunois M., Canadell J. G., Dlugokencky E. J., Bergamaschi P., Bergmann D., Blake D. R., Bruhwiler L., and Others. Three decades of global methane sources and sinks, *Nature Geoscience*, 6(10) :813–823, doi : [10.1038/ngeo1955](https://doi.org/10.1038/ngeo1955), 2013.
- Kort E. A., C. Frankenberg, K. R. Costigan, R. Lindenmaier, M. K. Dubey, and D. Wunch. Four Corners : the largest US methane anomaly viewed from space, *Geophysical Research Letters*, doi : [10.1002/2014GL061503](https://doi.org/10.1002/2014GL061503), 2014.
- Krinner G., N. Viovy, N. de Noblet-Ducoudré, J. Ogée, J. Polcher, P. Friedlingstein, P. Ciais, S. Sitch, and I. C. Prentice. A dynamic global vegetation model for studies of the coupled atmosphere-biosphere system, *Global Biogeochemical Cycles*, doi : [10.1029/2003GB002199](https://doi.org/10.1029/2003GB002199), 2005.

- Krol M., Houweling S., Bregman B., van den Broek M., Segers A., van Velthoven P., Peters W., Dentener F., and P. Bergamaschi. The two-way nested global chemistry-transport zoom model TM5 : algorithm and applications, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5(2) :417–432, doi : [10.5194/acp-5-417-2005](https://doi.org/10.5194/acp-5-417-2005), 2005.
- Lafore J.-P., Stein J., Asencio N., Bougeault P., Ducrocq V., Duron J., Fischer C., Héreil P., Mascart P., Masson V., Pinty J.-P., Redelsperger J.-L., Richard E. and J. de Arellano. The Meso-NH Atmospheric Simulation System. Part I : adiabatic formulation and control simulations. Scientific objectives and experimental design, *Annales Geophysicae*, 16, 90–109, doi : [10.1007/s00585-997-0090-6](https://doi.org/10.1007/s00585-997-0090-6), 1998.
- Lambert G. and S. Schmidt. Reevaluation of the oceanic flux of methane : Uncertainties and long term variations. *Chemosphere*, 26(1–4) :579–589, doi : [10.1016/0045-6535\(93\)90443-9](https://doi.org/10.1016/0045-6535(93)90443-9), 1993.
- Lassey K. R., D. C. Lowe, and M. R. Manning. The trend in atmospheric methane $\delta^{13}\text{C}$ and implications for isotopic constraints on the global methane budget, *Global Biogeochemical Cycles*, 14(1) :41–49, doi : [10.1029/1999GB900094](https://doi.org/10.1029/1999GB900094), 2000.
- Laval K., R. Sadourny, and Y. Serafini. Land surface processes in a simplified general circulation model, *Geophysical & Astrophysical Fluid Dynamics*, 17(1) :129–150, doi : [10.1080/03091928108243677](https://doi.org/10.1080/03091928108243677), 1981.
- Law R., Rayner P., Denning A. S., Erickson D., Fung I. Y., Heimann M., Piper S. C., Ramonet M., Taguchi S., Taylor J. A., Trudinger C. M., and I. G. Watterson. Variations in modeled atmospheric transport of carbon dioxide and the consequences for CO_2 inversions, *Global Biogeochemical Cycles*, doi : [10.1029/96GB01892](https://doi.org/10.1029/96GB01892), 1996.
- Law R. M., et al. TransCom model simulations of hourly atmospheric CO_2 : Experimental overview and diurnal cycle results for 2002, *Global Biogeochemical Cycles*, doi : [10.1029/2007GB003050](https://doi.org/10.1029/2007GB003050), 2008.
- Lawrence D. M., Slater A. G., Tomas R. A., Holland M. M., and C. Deser. Accelerated Arctic land warming and permafrost degradation during rapid sea ice loss, *Geophysical Research Letters*, doi : [10.1029/2008GL033985](https://doi.org/10.1029/2008GL033985), 2008.
- Lawrence M. G., Jöckel P., and R. von Kuhlmann. What does the global mean OH concentration tell us?, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 1(1) :37–49, doi : [10.5194/acp-1-37-2001](https://doi.org/10.5194/acp-1-37-2001), 2001.
- van Leer B. Towards the ultimate conservative difference scheme. IV. A new approach to numerical convection, *Journal of Computational Physics*, 23(3) :276–299, doi : [10.1016/0021-9991\(77\)90095-X](https://doi.org/10.1016/0021-9991(77)90095-X), 1977.
- Lelieveld J., and P. J. Crutzen. Role of Deep Cloud Convection in the Ozone Budget of the Troposphere, *Science (New York, N.Y.)*, 264, 1759–1761, doi : [10.1126/science.264.5166.1759](https://doi.org/10.1126/science.264.5166.1759), 1994.
- Levin I., Veidt C., Vaughn B. H., Brailsford G., Bromley T., Heinz R., Lowe D., Miller J. B., Posz C., and J. W. C. White. No inter-hemispheric $^{13}\text{C}\text{H}_4$ trend observed, *Nature*, 486(7404) :E3–E4, doi : [10.1038/nature11175](https://doi.org/10.1038/nature11175), 2012.
- Lewis S. L., P. M. Brando, O. L. Phillips, G. M. F. van der Heijden, and D. Nepstad. The 2010 Amazon Drought, *Science*, 331(6017) :554, doi : [10.1126/science.1200807](https://doi.org/10.1126/science.1200807), 2011.

- Levy H. Normal Atmosphere : Large Radical and Formaldehyde Concentrations Predicted, *Science*, 173(3992) :141–143, doi : [10.1126/science.173.3992.141](https://doi.org/10.1126/science.173.3992.141), 1971.
- Li Z. Ensemble atmospheric GCM simulation of climate interannual variability from 1979 to 1994, *Journal of Climate*, 12(1994) :986–1001, doi : [10.1175/1520-0442\(1999\)012<0986:EAGSOC>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0442(1999)012<0986:EAGSOC>2.0.CO;2), 1999.
- Li Z. and S. Conil. A 1000-year simulation with the IPSL ocean-atmosphere coupled model, *Annals of Geophysics*, doi : [10.4401/ag-3387](https://doi.org/10.4401/ag-3387), 2003.
- Locatelli R., Bousquet P., Chevallier F., Fortems-Cheney A., Szopa S., Saunois M., Agusti-Panareda A., Bergmann D., Bian H., Cameron-Smith P., Chipperfield M. P., Gloor E., Houweling S., Kawa S. R., Krol M., Patra P. K., Prinn R. G., Rigby M., Saito R., and C. Wilson. Impact of transport model errors on the global and regional methane emissions estimated by inverse modelling, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(19) :9917–9937, doi : [10.5194/acp-13-9917-2013](https://doi.org/10.5194/acp-13-9917-2013), 2013.
- Locatelli R., P. Bousquet, F. Hourdin, M. Saunois, A. Cozic, F. Couvreux, J.-Y. Grandpeix, M.-P. Lefebvre, C. Rio, P. Bergamaschi, S. D. Chambers, U. Karstens, V. Kazan, S. van der Laan, H. A. J. Meijer, J. Moncrieff, M. Ramonet, H. A. Scheeren, C. Schlosser, M. Schmidt, A. Vermeulen, and A. G. Williams. Atmospheric transport and chemistry of trace gases in LMDz5B : evaluation and implications for inverse modelling, *Geoscientific Model Development Discussions*, 7(4) :4993–5048, doi : [10.5194/gmdd-7-4993-2014](https://doi.org/10.5194/gmdd-7-4993-2014), 2014.
- Louis J. F. A parametric model of vertical eddy fluxes in the atmosphere, *Boundary-Layer Meteorology*, 7 :187–202, doi : [10.1007/BF00117978](https://doi.org/10.1007/BF00117978), 1979.
- Louergue L., Schilt A., Spahni R., Masson-Delmotte V., Blunier T., Lemieux B., Barnola J.-M., Raynaud D., Stocker T. F., and J. Chappellaz. Orbital and millennial-scale features of atmospheric CH₄ over the past 800,000 years, *Nature*, 453(7193) :383–386, doi : [10.1038/nature06950](https://doi.org/10.1038/nature06950), 2008.
- Mahowald N. M., P. J. Rasch, and R. G. Prinn. Cumulus parameterizations in chemical transport models, *Journal of Geophysical Research*, doi : [10.1029/95JD02606](https://doi.org/10.1029/95JD02606), 1995.
- Mahowald N. M., Rasch P. J., Eaton B. E., Whittleston S. and R. G. Prinn. Transport of ²²²Radon to the remote troposphere using MATCH and assimilated winds from ECMWF and NCEP/NCAR, *Journal Geophysical Research*, 102, 28139–28152, doi : [10.1029/97JD02084](https://doi.org/10.1029/97JD02084), 1997.
- Maiss M., Steele L., and R. Francey. Sulfur hexafluoride : A powerful new atmospheric tracer, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 30, 1621–1629, 1996.
- Maiss M., and C. Brenninkmeijer. Atmospheric SF₆ : trends, sources, and prospects, *Environmental Science*, 32, 3077–3086, doi : [10.1021/es9802807](https://doi.org/10.1021/es9802807), 1998.
- Mao J., S. Fan, D. J. Jacob, and K. R. Travis. Radical loss in the atmosphere from Cu-Fe redox coupling in aerosols, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(2) :509–519, doi : [10.5194/acp-13-509-2013](https://doi.org/10.5194/acp-13-509-2013), 2013.
- Marengo J. A., J. Tomasella, L. M. Alves, W. R. Soares, and D. A. Rodriguez. The drought of 2010 in the context of historical droughts in the Amazon region, *Geophysical Research Letters*, doi : [10.1029/2011GL047436](https://doi.org/10.1029/2011GL047436), 2011.

- Marti O., Braconnot P., and J. Dufresne. Key features of the IPSL ocean atmosphere model and its sensitivity to atmospheric resolution, *Climate dynamics*, 1–43, doi : [10.1007/s00382-009-0640-6](https://doi.org/10.1007/s00382-009-0640-6), 2010.
- McCarthy M. C., P. Connell, and K. A. Boering. Isotopic fractionation of methane in the stratosphere and its effect on free tropospheric isotopic compositions, *Geophysical Research Letters*, 28(19) :3657–3660, doi : [10.1029/2001GL013159](https://doi.org/10.1029/2001GL013159), 2001.
- McGrath-Spangler, E. L., and A. S. Denning. Global seasonal variations of midday planetary boundary layer depth from CALIPSO space-borne LIDAR, *Journal of Geophysical Research*, 118, doi : [10.1002/jgrd.50198](https://doi.org/10.1002/jgrd.50198), 2013.
- McGuire A. D., Macdonald R. W., Schuur E. A. G., Harden J. W., Kuhry P., Hayes D. J., Christensen T. R., and M. Heimann. The carbon budget of the northern cryosphere region, *Current Opinion in Environmental Sustainability*, 2(4) :231–236, doi : [10.1016/j.cosust.2010.05.003](https://doi.org/10.1016/j.cosust.2010.05.003), 2010.
- Melack J. M., L. L. Hess, M. Gastil, B. R. Forsberg, S. K. Hamilton, I. B. T. Lima, and E. M. Novo. Regionalization of methane emissions in the Amazon Basin with microwave remote sensing, *Global Change Biology*, 10(5) :530–544, doi : [10.1111/j.1365-2486.2004.00763.x](https://doi.org/10.1111/j.1365-2486.2004.00763.x), 2004.
- Melton J. R., Wania R., Hodson E. L., Poulter B., Ringeval B., Spahni R., Bohn T., Avis C. A., Beerling D. J., Chen G., Eliseev A. V., Denisov S. N., Hopcroft P. O., Lettenmaier D. P., Riley W. J., Singarayer J. S., Subin Z. M., Tian H., Zürcher S., Brovkin V., van Bodegom P. M., Kleinen T., Yu Z. C., and J. O. Kaplan. Present state of global wetland extent and wetland methane modelling : conclusions from a model inter-comparison project (WETCHIMP), *Biogeosciences*, 10(2) :753–788, doi : [10.5194/bg-10-753-2013](https://doi.org/10.5194/bg-10-753-2013), 2013.
- Mitchell T. D. and P. D. Jones. An improved method of constructing a database of monthly climate observations and associated high-resolution grids, *International Journal of Climatology*, 25(6) :693–712, doi : [10.1002/joc.1181](https://doi.org/10.1002/joc.1181), 2005.
- Monteil G., S. Houweling, E. J. Dlugokenky, G. Maenhout, B. H. Vaughn, J. W. C. White, and T. Rockmann. Interpreting methane variations in the past two decades using measurements of CH₄ mixing ratio and isotopic composition, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(17) :9141–9153, doi : [10.5194/acp-11-9141-2011](https://doi.org/10.5194/acp-11-9141-2011), 2011.
- Monteil G., S. Houweling, A. Butz, S. Guerlet, D. Schepers, O. Hasekamp, C. Frankenberg, R. Scheepmaker, I. Aben and T. Röckmann. Comparison of CH₄ inversions based on 15 months of GOSAT and SCIAMACHY observations, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 118(D3) :807—811, doi : [10.1002/2013JD019760](https://doi.org/10.1002/2013JD019760), 2013.
- Monteil G. et al. Identifying and quantifying biases in inverse modelling of GOSAT XCH₄ retrievals, in preparation, 2014.
- Montzka S. A., Dlugokenky E. J., and J. H. Butler. Non-CO₂ greenhouse gases and climate change, *Nature*, 476(7358) :43–50, doi : [10.1038/nature10322](https://doi.org/10.1038/nature10322), 2011.
- Morris R. A., Miller T. M., Viggiano A. A., Paulson J. F., Solomon S., and G. Reid. Effects of electron and ions reactions on atmospheric lifetimes of fully fluorinated compounds, *Journal of Geophysical Research*, 100, 1287–1294, doi : [10.1029/94JD02399](https://doi.org/10.1029/94JD02399), 1997.

- Naik V., Voulgarakis A., Fiore A. M., Horowitz L. W., Lamarque J.-F., Lin M., Prather M. J., Young P. J., Bergmann D., Cameron-Smith P. J., Cionni I., Collins W. J., Dalsøren S. B., Doherty R., Eyring V., Faluvegi G., Folberth G. A., Josse B., Lee Y. H., MacKenzie I. A., Nagashima T., van Noije T. P. C., Plummer D. A., Righi M., Rumbold S. T., Skeie R., Shindell D. T., Stevenson D. S., Strode S., Sudo K., Szopa S., and G. Zeng. Preindustrial to present-day changes in tropospheric hydroxyl radical and methane lifetime from the Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP), *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(10) :5277–5298, doi : [10.5194/acp-13-5277-2013](https://doi.org/10.5194/acp-13-5277-2013), 2013.
- Nara H., H. Tanimoto, Y. Tohjima, H. Mukai, Y. Nojiri, and T. Machida. Emissions of methane from offshore oil and gas platforms in Southeast Asia, *Sci. Rep.*, 4, doi : [10.1038/srep06503](https://doi.org/10.1038/srep06503), 2014.
- Neef L., van Weele M., and P. van Velthoven. Optimal estimation of the present-day global methane budget, *Global Biogeochemical Cycles*, 24(4), doi : [10.1029/2009GB003661](https://doi.org/10.1029/2009GB003661), 2010.
- Nisbet R. E. R., Fisher R., Nimmo R. H., Bendall D. S., Crill P. M., Gallego-Sala A. V., Hornibrook E. R. C., López-Juez E., Lowry D., Nisbet P. B. R., Shuckburgh E. F., Sriskantharajah S., Howe C. J., and E. G. Nisbet. Emission of methane from plants, *Proceedings of the Royal Society B : Biological Sciences*, 276(1660) :1347–1354, doi : [10.1098/rspb.2008.1731](https://doi.org/10.1098/rspb.2008.1731), 2009.
- Olivier J. G. J. and G. Janssens-Maenhout. CO₂ Emissions from Fuel Combustion, *IEA CO₂ report 2012*, Greenhouse-Gas Emissions, 2012.
- Pal S., M. Haeffelin, and E. Batchvarova. Exploring a geophysical process-based attribution technique for the determination of the atmospheric boundary layer depth using aerosol lidar and near-surface meteorological measurements, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 118(16) :9277–9295, doi : [10.1002/jgrd.50710](https://doi.org/10.1002/jgrd.50710), 2013.
- Parker R., H. Boesch, A. Cogan, A. Fraser, L. Feng, P. I. Palmer, J. Messerschmidt, N. Deutscher, D. W. T. Griffith, J. Notholt, P. O. Wennberg, and D. Wunch. Methane observations from the Greenhouse Gases Observing SATellite : Comparison to ground-based TCCON data and model calculations, *Geophysical Research Letters*, doi : [10.1029/2011GL047871](https://doi.org/10.1029/2011GL047871), 2011.
- Patra P. K., Takigawa M., Ishijima K., Choi B.-C., Cunnold D., Dlugokencky E. J., Fraser P., Gomez-Pelaez A. J., Goo T.-Y., Kim J.-S., Krummel P., Langenfelds R., Meinhardt F., Mukai H., O'Doherty S., Prinn R. G., Simmonds P., Steele P., Tohjima Y., Tsuboi K., Uhse K., Weiss R., Worthy D., and T. Nakazawa. Growth Rate, Seasonal, Synoptic, Diurnal Variations and Budget of Methane in the Lower Atmosphere, *Journal of the Meteorological Society of Japan*, 87, 635–663, doi : [10.2151/jmsj.87.635](https://doi.org/10.2151/jmsj.87.635), 2009.
- Patra P. K., Houweling S., Krol M., Bousquet P., Belikov D., Bergmann D., Bian H., Cameron-Smith P., Chipperfield M. P., Corbin K., Fortems-Cheiney A., Fraser A., Gloor E., Hess P., Ito A., Kawa S. R., Law R. M., Loh Z., Maksyutov S., Meng L., Palmer P. I., Prinn R. G., Rigby M., Saito R., and C. Wilson. TransCom model simulations of CH₄ and related species : linking transport, surface flux and chemical loss with CH₄ variability in the troposphere and lower stratosphere, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(24) :12813–12837, doi : [10.5194/acp-11-12813-2011](https://doi.org/10.5194/acp-11-12813-2011), 2011.
- Patra P. K., M. C. Krol, S. A. Montzka, T. Arnold, E. L. Atlas, B. R. Lintner, B. B. Stephens, B. Xiang, J. W. Elkins, P. J. Fraser, A. Ghosh, E. J. Hintsa, D. F. Hurst, K. Ishijima,

- P. B. Krummel, B. R. Miller, K. Miyazaki, F. L. Moore, J. Muhle, S. O'Doherty, R. G. Prinn, L. P. Steele, M. Takigawa, H. J. Wang, R. F. Weiss, S. C. Wofsy, and D. Young. Observational evidence for interhemispheric hydroxyl-radical parity, *Nature*, 513 (7517) :219–223, doi : [10.1038/nature13721](https://doi.org/10.1038/nature13721) [10.1038/nature13721](https://doi.org/10.1038/nature13721), 2014.
- Peylin P., Rayner P., Bousquet P., Carouge C., Hourdin F., Heinrich P., Ciais P., and AEROCARB contributors. Daily CO₂ flux estimates over Europe from continuous atmospheric measurements : 1, inverse methodology, *Atmospheric Chemistry and Physics*, doi : [10.5194/acp-5-3173-2005](https://doi.org/10.5194/acp-5-3173-2005), 2005.
- Pison I., Bousquet P., Chevallier F., Szopa S., and D. Hauglustaine. Multi-species inversion of CH₄, CO and H₂ emissions from surface measurements, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(14) :5281–5297, doi : [10.5194/acp-9-5281-2009](https://doi.org/10.5194/acp-9-5281-2009), 2009.
- Pison I., Ringeval B., Bousquet P., Prigent C., and F. Papa. Stable atmospheric methane in the 2000s : key-role of emissions from natural wetlands, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(23) :11609–11623, doi : [10.5194/acp-13-11609-2013](https://doi.org/10.5194/acp-13-11609-2013), 2013.
- Prigent C., F. Papa, F. Aires, W. B. Rossow, and E. Matthews. Global inundation dynamics inferred from multiple satellite observations, 1993–2000, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, doi : [10.1029/2006JD007847](https://doi.org/10.1029/2006JD007847), 2007.
- Prinn R. G. Evidence for variability of atmospheric hydroxyl radicals over the past quarter century, *Geophysical Research Letters*, 32(7), doi : [10.1029/2004GL022228](https://doi.org/10.1029/2004GL022228), 2005.
- Quay P., J. Stutsman, D. Wilbur, A. Snover, E. Dlugokencky, and T. Brown. The isotopic composition of atmospheric methane, *Global Biogeochemical Cycles*, 13(2) :445–461, doi : [10.1029/1998GB900006](https://doi.org/10.1029/1998GB900006), 1999.
- Randerson J. T., G. R. van der Werf, L. Giglio, G. J. Collatz, and P.S. Kasibhatla. Global Fire Emissions Database, Version 3 (GFEDv3.1), Available on-line [[http ://daac.ornl.gov/](http://daac.ornl.gov/)] from Oak Ridge National Laboratory Distributed Active Archive Center, Oak Ridge, Tennessee, USA., doi : [10.3334/ORNLDAAAC/1191](https://doi.org/10.3334/ORNLDAAAC/1191), 2013.
- Ravishankara A. R., Solomon S., Turnipseed A. A., and R. F. Warren. Atmospheric lifetimes of long-lived halogenated species, *Science (New York, N.Y.)*, 259, 194–9, doi : [10.1126/science.259.5092.194](https://doi.org/10.1126/science.259.5092.194), 1993.
- Rayner P., I. Enting, R. Francey, and R. Langenfelds. Reconstructing the recent carbon cycle from atmospheric CO₂, $\delta^{13}\text{C}$ and O₂/N₂ observations, *Tellus B*, pp. 213–232, doi : [10.1034/j.1600-0889.1999.t01-1-00008.x](https://doi.org/10.1034/j.1600-0889.1999.t01-1-00008.x), 1999.
- Rayner P. and D. O'Brien D. The utility of remotely sensed CO₂ concentration data in surface source inversions, *Geophysical Research Letters*, 28, 175–178, doi : [10.1029/2000GL011912](https://doi.org/10.1029/2000GL011912), 2001.
- Razavi A., C. Clerbaux, C. Wespes, L. Clarisse, D. Hurtmans, S. Payan, C. Camy-Peyret, and P. F. Coheur. Characterization of methane retrievals from the IASI space-borne sounder, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(20) :7889–7899, doi : [10.5194/acp-9-7889-2009](https://doi.org/10.5194/acp-9-7889-2009), 2009.
- Reichler T., Dameris M., and R. Sausen. Determining the tropopause height from gridded data, *Geophysical Research Letters*, 30, 2042, doi : [10.1029/2003GL018240](https://doi.org/10.1029/2003GL018240), 2003.

- Rigby M., R. G. Prinn, P. J. Fraser, P. G. Simmonds, R. L. Langenfelds, J. Huang, D. M. Cunnold, L. P. Steele, P. B. Krummel, R. F. Weiss, S. O'Doherty, P. K. Salameh, H. J. Wang, C. M. Harth, J. Mühle, and L. W. Porter. Renewed growth of atmospheric methane, *Geophysical Research Letters*, doi : [10.1029/2008GL036037](https://doi.org/10.1029/2008GL036037), 2008.
- Ringeval B., N. de Noblet-Ducoudré, P. Ciais, P. Bousquet, C. Prigent, F. Papa, and W. B. Rossow. An attempt to quantify the impact of changes in wetland extent on methane emissions on the seasonal and interannual time scales, *Global Biogeochemical Cycles*, doi : [10.1029/2008GB003354](https://doi.org/10.1029/2008GB003354), 2010.
- Ringeval B., P. Friedlingstein, C. Koven, P. Ciais, N. de Noblet-Ducoudré, B. Decharme, and P. Cadule. Climate-CH₄ feedback from wetlands and its interaction with the climate-CO₂ feedback, *Biogeosciences*, 8(8) :2137–2157, doi : [10.5194/bg-8-2137-2011](https://doi.org/10.5194/bg-8-2137-2011), 2011.
- Ringeval B., S. Houweling, P. M. van Bodegom, R. Spahni, R. van Beek, F. Joos, and T. Röckmann. Methane emissions from floodplains in the Amazon Basin : challenges in developing a process-based model for global applications, *Biogeosciences*, 11(6) : 1519–1558, doi : [10.5194/bg-11-1519-2014](https://doi.org/10.5194/bg-11-1519-2014), 2014.
- Rio C. and F. Hourdin. A Thermal Plume Model for the Convective Boundary Layer : Representation of Cumulus Clouds, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 65(2) :407–425, doi : [10.1175/2007JAS2256.1](https://doi.org/10.1175/2007JAS2256.1), 2008.
- Rio C., Hourdin F., Grandpeix J.-Y. and J.-P. Lafore. Shifting the diurnal cycle of parameterized deep convection over land, *Geophysical Research Letters*, 36, L07809, doi : [10.1029/2008GL036779](https://doi.org/10.1029/2008GL036779), 2009.
- Röckmann T., M. Brass, R. Borchers, and A. Engel. The isotopic composition of methane in the stratosphere : high-altitude balloon sample measurements, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(24) :13287–13304, doi : [10.5194/acp-11-13287-2011](https://doi.org/10.5194/acp-11-13287-2011), 2011.
- Rödenbeck C., S. Houweling, M. Gloor, and M. Heimann. Time-dependent atmospheric CO₂ inversions based on interannually varying tracer transport, *Tellus B*, 55(2) : 488–497, doi : [10.1034/j.1600-0889.2003.00033.x](https://doi.org/10.1034/j.1600-0889.2003.00033.x), 2003.
- Rodgers, C. D., *Inverse Methods for Atmospheric Sounding : Theory and Practice*, World Scientific Publishing Co. Ltd, London, United-Kingdom, 2000.
- Saikawa E., M. Rigby, R. G. Prinn, S. A. Montzka, B. R. Miller, L. J. M. Kuijpers, P. J. B. Fraser, M. K. Vollmer, T. Saito, Y. Yokouchi, C. M. Harth, J. Mühle, R. F. Weiss, P. K. Salameh, J. Kim, S. Li, S. Park, K.-R. Kim, D. Young, S. O'Doherty, P. G. Simmonds, A. McCulloch, P. B. Krummel, L. P. Steele, C. Lunder, O. Hermansen, M. Maione, J. Arduini, B. Yao, L. X. Zhou, H. J. Wang, J. W. Elkins, and B. Hall. Global and regional emission estimates for HCFC-22. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12 (21) :10033–10050, doi : [10.5194/acp-12-10033-2012](https://doi.org/10.5194/acp-12-10033-2012), 2012.
- Saito R., Patra P. K., Sweeney C., Machida T., Krol M., Sander Houweling, Philippe Bousquet, Agustí-Panareda A., Belikov D., Bergmann D., Bian H., Cameron-Smith P., Chipperfield M. P., Fortems-Cheiney A., Fraser A., Gatti L. V., Gloor E., Hess P., Kawa S. R., Law R. M., Locatelli R., Loh Z., Shamil Maksyutov S., Meng L., Miller J. B., Palmer P. I., Prinn R. G., Rigby M., and C. Wilson. TransCom model simulations of methane : Comparison of vertical profiles with aircraft measurements, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 118(9) :3891–3904, doi : [10.1002/jgrd.50380](https://doi.org/10.1002/jgrd.50380), 2013.

- Sanderson M. G. Biomass of termites and their emissions of methane and carbon dioxide : A global database. *Global Biogeochemical Cycles*, 10(4) :543–557, doi : [10.1029/96GB01893](https://doi.org/10.1029/96GB01893), 1996.
- Schmidt G. A., R. A. Ruedy, R. L. Miller, and A. A. Lacis. Attribution of the present-day total greenhouse effect, *J. Geophys. Res.*, 115 :D20106, 2010.
- Schmithüsen et al. : Assessment of the Heidelberg static filter ²²²Radon monitor and its comparison to various measurement systems at European observatories, Manuscript in preparation, 2014.
- Schneider U. Global precipitation analysis products of the GPCC, 2008.
- Schroeder R., M. A. Rawlins, K. C. McDonald, E. Podest, R. Zimmermann, and M. Kueppers. Satellite microwave remote sensing of North Eurasian inundation dynamics : development of coarse-resolution products and comparison with high-resolution synthetic aperture radar data, *Environmental Research Letters*, 5(1) : 15003, [10.1088/1748-9326/5/1/015003](https://doi.org/10.1088/1748-9326/5/1/015003), 2010.
- Schuck T. J., K. Ishijima, P. K. Patra, A. K. Baker, T. Machida, H. Matsueda, Y. Sawa, T. Umezawa, C. A. M. Brenninkmeijer, and J. Lelieveld. Distribution of methane in the tropical upper troposphere measured by CARIBIC and CONTRAIL aircraft, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, doi : [10.1029/2012JD018199](https://doi.org/10.1029/2012JD018199), 2012.
- Schuur E. A. G., J. Bockheim, J. G. Canadell, E. Euskirchen, C. B. Field, S. V. Goryachkin, S. Hagemann, P. Kuhry, P. M. Lafleur, H. Lee, G. Mazhitova, F. E. Nelson, A. Rinke, V. E. Romanovsky, N. Shiklomanov, C. Tarnocai, S. Venevsky, J. G. Vogel, and S. A. Zimov. Vulnerability of Permafrost Carbon to Climate Change : Implications for the Global Carbon Cycle, *BioScience*, 58(8) :701–714, doi : [10.1641/B580807](https://doi.org/10.1641/B580807), 2008.
- Segers A., Velthoven P., Bregman B. and M. Krol. On the computation of Mass Fluxes for Eulerian Transport Models from Spectral Meteorological Fields, *Computational Science – ICCS 2002*, 2330, 767-776, doi : [10.1007/3-540-46080-2](https://doi.org/10.1007/3-540-46080-2), 2002.
- Seidel D. J., Chi O., and L. Kun. Estimating climatological planetary boundary layer heights from radiosonde observations : Comparison of methods and uncertainty analysis, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, doi : [10.1029/2009JD013680](https://doi.org/10.1029/2009JD013680), 2010.
- Seidel D. J., Zhang Y., Beljaars A. C. M., Golaz J.-C., Jacobson A. R., and B. Me-deiros. Climatology of the planetary boundary layer over the continental United States and Europe, *Journal of Geophysical Research*, 117, D17106, doi : [10.1029/2012JD018143](https://doi.org/10.1029/2012JD018143), 2012.
- Shallcross D. E. and T. G. Harrison. Climate change made simple, *Physics Education*, 42(6) :592, 2007.
- Shindell D. T. Climate and ozone response to increased stratospheric water vapor, *Geophysical Research Letters*, 28(8) :1551–1554, doi : [10.1029/1999GL011197](https://doi.org/10.1029/1999GL011197), 2001.
- Simpson I. J., T.-Y. Chen, D. R. Blake, and F. S. Rowland. Implications of the recent fluctuations in the growth rate of tropospheric methane, *Geophysical Research Letters*, 29(10) :114–117, doi : [10.1029/2001GL014521](https://doi.org/10.1029/2001GL014521), 2002.
- Simpson I. J., F. S. Rowland, S. Meinardi, and D. R. Blake. Influence of biomass burning during recent fluctuations in the slow growth of global tropospheric methane, *Geophysical Research Letters*, doi : [10.1029/2006GL027330](https://doi.org/10.1029/2006GL027330), 2006.

- Simpson I. J., Sulbaek Andersen M. P., Meinardi S., Bruhwiler L., Blake N. J., Helmig D., Rowland F. S., and D. R. Blake. Long-term decline of global atmospheric ethane concentrations and implications for methane, *Nature*, 488(7412) :490–494, doi : [10.1038/nature11342](https://doi.org/10.1038/nature11342), 2012.
- Stephens B. B. et al. Weak northern and strong tropical land carbon uptake from vertical profiles of atmospheric CO₂, *Science (New York, N.Y.)*, 316, 1732–5, doi : [10.1126/science.1137004](https://doi.org/10.1126/science.1137004), 2007.
- Stephens B. B., Wofsy S. C., Keeling R. F., Tans P. P., and M. J., Potosnak. The CO₂ Budget and Rectification Airborne Study : Strategies for Measuring Rectifiers and Regional Fluxes, *Inverse Methods in Global Biogeochemical Cycles (eds P. Kasibhatla, M. Heimann, P. Rayner, N. Mahowald, R. G. Prinn and D. E. Hartley)*, American Geophysical Union, Washington D.C., doi : [10.1029/GM114p0311](https://doi.org/10.1029/GM114p0311), 2013.
- Stohl A., P. Seibert, J. Arduini, S. Eckhardt, P. Fraser, B. R. Grealley, C. Lunder, M. Maione, J. Mühle, S. O'Doherty, R. G. Prinn, S. Reimann, T. Saito, N. Schmidbauer, P. G. Simmonds, M. K. Vollmer, R. F. Weiss, and Y. Yokouchi. An analytical inversion method for determining regional and global emissions of greenhouse gases : Sensitivity studies and application to halocarbons, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9 (5) :1597–1620, doi : [10.5194/acp-9-1597-2009](https://doi.org/10.5194/acp-9-1597-2009), 2009.
- Stroeve J., M. Serreze, S. Drobot, S. Gearheard, M. Holland, J. Maslanik, W. Meier, and T. Scambos. Arctic Sea Ice Extent Plummets in 2007, *Eos, Transactions American Geophysical Union*, 89(2) :13–14, doi : [10.1029/2008EO020001](https://doi.org/10.1029/2008EO020001), 2008.
- Taraborrelli D., M. G. Lawrence, J. N. Crowley, T. J. Dillon, S. Gromov, C. B. M. Grosz, L. Vereecken, and J. Lelieveld. Hydroxyl radical buffered by isoprene oxidation over tropical forests, *Nature Geosciences*, 5(3) :190–193, doi : [10.1038/ngeo1405](https://doi.org/10.1038/ngeo1405), 2012.
- Stull R. B. Transilient Turbulence Theory. Part I : The Concept of Eddy-Mixing across Finite Distances, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 41(23) :3351–3367, doi : [10.1175/1520-0469\(1984\)041<3351:TTPIT>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0469(1984)041<3351:TTPIT>2.0.CO;2), 1984.
- Sussmann R., F. Forster, M. Rettinger, and P. Bousquet. Renewed methane increase for five years (2007–2011) observed by solar FTIR spectrometry, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12(11) :4885–4891, doi : [10.5194/acp-12-4885-2012](https://doi.org/10.5194/acp-12-4885-2012), 2012.
- Szopa S., Y. Balkanski, M. Schulz, S. Bekki, D. Cugnet, A. Fortems-Cheiney, S. Turquety, A. Cozic, C. Déandreis, D. Hauglustaine, A. Idelkadi, J. Lathière, F. Lefevre, M. Marchand, R. Vuolo, N. Yan, and J.-L. Dufresne. Aerosol and ozone changes as forcing for climate evolution between 1850 and 2100, *Climate Dynamics*, 40(9-10) :2223–2250, doi : [10.1007/s00382-012-1408-y](https://doi.org/10.1007/s00382-012-1408-y) 2013.
- Tarantola, A., *Inverse Problem Theory*, Society for Industrial and Applied Mathematics, Philadelphia, USA, 2005.
- Tarnocai C., J. G. Canadell, E. A. G. Schuur, P. Kuhry, G. Mazhitova, and S. Zimov. Soil organic carbon pools in the northern circumpolar permafrost region, *Global Biogeochemical Cycles*, doi : [10.1029/2008GB003327](https://doi.org/10.1029/2008GB003327), 2009.
- Tiedtke M. A Comprehensive Mass Flux Scheme for Cumulus Parameterization in Large-Scale Models, *Monthly Weather Review*, 117(8) :1779–1800, doi : [10.1175/1520-0493\(1989\)117<1779:ACMFSF>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0493(1989)117<1779:ACMFSF>2.0.CO;2), 1989.

- Thompson R. L., P. K. Patra, K. Ishijima, E. Saikawa, M. Corazza, U. Karstens, C. Wilson, P. Bergamaschi, E. Dlugokencky, C. Sweeney, R. G. Prinn, R. F. Weiss, S. O'Doherty, P. J. Fraser, L. P. Steele, P. B. Krummel, M. Saunois, M. Chipperfield, and P. Bousquet. TransCom N₂O model inter-comparison – Part 1 : Assessing the influence of transport and surface fluxes on tropospheric N₂O variability, *Atmospheric, Chemistry and Physics*, doi : [10.5194/acpd-14-2307-2014](https://doi.org/10.5194/acpd-14-2307-2014), 2014.
- Thoning K. W., P. P. Tans, and W. D. Komhyr. Atmospheric carbon dioxide at Mauna Loa Observatory : 2. Analysis of the NOAA GMCC data, 1974–1985, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 94(D6) :8549–8565, doi : [10.1029/JD094iD06p08549](https://doi.org/10.1029/JD094iD06p08549), 1989.
- Tost H., and M. Lawrence. Uncertainties in atmospheric chemistry modelling due to convection parameterisations and subsequent scavenging, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10, 1931–1951, doi : [10.5194/acp-10-1931-2010](https://doi.org/10.5194/acp-10-1931-2010), 2010.
- Trenberth K. E. and T. J. Hoar. El Niño and climate change, *Geophysical Research Letters*, 24(23) :3057–3060, doi : [10.1029/97GL03092](https://doi.org/10.1029/97GL03092), 1997.
- Tyler S. C., A. L. Rice, and H. O. Ajie. Stable isotope ratios in atmospheric CH₄ : Implications for seasonal sources and sinks, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, doi : [10.1029/2006JD007231](https://doi.org/10.1029/2006JD007231), 2007.
- Vaughan D.G., J.C. Comiso, I. Allison, J. Carrasco, G. Kaser, R. Kwok, P. Mote, T. Murray, F. Paul, J. Ren, E. Rignot, O. Solomina, K. Steffen and T. Zhang. Observations : Cryosphere. In : *Climate Change 2013 : The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, [Stocker, T.F., D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S.K. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex and P.M. Midgley (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 2013.
- Vautard R., C. Honoré, M. Beekmann, and L. Rouil. Simulation of ozone during the August 2003 heat wave and emission control scenarios, *Atmospheric Environment*, 39(16) :2957–2967, doi : [10.1016/j.atmosenv.2005.01.039](https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2005.01.039), 2005.
- Vermorel M. Yearly methane emissions of digestive origin by cattle in France. Variations with type and level of production, *INRA Productions Animales*, 8(4) :265–272, 1995.
- Vigano I., H. van Weelden, R. Holzinger, F. Keppler, A. McLeod, and T. Röckmann. Effect of UV radiation and temperature on the emission of methane from plant biomass and structural components, *Biogeosciences*, 5(3) :937–947, doi : [10.5194/bg-5-937-2008](https://doi.org/10.5194/bg-5-937-2008), 2008.
- Vogelezang D. H. P. and A. A. M. Holtslag. Evaluation and model impacts of alternative boundary-layer height formulations, *Boundary-Layer Meteorology*, 81(3-4) :245–269, doi : [10.1007/BF02430331](https://doi.org/10.1007/BF02430331), 1996.
- Voulgarakis A., V. Naik, J.-F. Lamarque, D. T. Shindell, P. J. Young, M. J. Prather, O. Wild, R. D. Field, D. Bergmann, P. Cameron-Smith, I. Cionni, W. J. Collins, S. B. Dalsø ren, R. M. Doherty, V. Eyring, G. Faluvegi, G. A. Folberth, L. W. Horowitz, B. Josse, I. A. MacKenzie, T. Nagashima, D. A. Plummer, M. Righi, S. T. Rumbold, D. S. Stevenson, S. A. Strode, K. Sudo, S. Szopa, and G. Zeng. Analysis of present day and future OH and methane lifetime in the ACCMIP simulations, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(5) :2563–2587, doi : [10.5194/acp-13-2563-2013](https://doi.org/10.5194/acp-13-2563-2013), 2013.

- Wania R., J. R. Melton, E. L. Hodson, B. Poulter, B. Ringeval, R. Spahni, T. Bohn, C. A. Avis, G. Chen, A. V. Eliseev, P. O. Hopcroft, W. J. Riley, Z. M. Subin, H. Tian, P. M. van Bodegom, T. Kleinen, Z. C. Yu, J. S. Singarayer, S. Zürcher, D. P. Lettenmaier, D. J. Beerling, S. N. Denisov, C. Prigent, F. Papa, and J. O. Kaplan. Present state of global wetland extent and wetland methane modelling : methodology of a model inter-comparison project (WETCHIMP), *Geoscientific Model Development*, 6(3) :617–641, doi : [10.5194/gmd-6-617-2013](https://doi.org/10.5194/gmd-6-617-2013), 2013.
- Wecht K. J., D. J. Jacob, C. Frankenberg, Z. Jiang, and D. R. Blake. Mapping of North American methane emissions with high spatial resolution by inversion of SCIAMACHY satellite data, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 119(12) :7741–7756, doi : [10.1002/2014JD021551](https://doi.org/10.1002/2014JD021551), 2014.
- van der Werf G. R., J. T. Randerson, L. Giglio, G. J. Collatz, P. S. Kasibhatla, and A. F. Arellano Jr. Interannual variability in global biomass burning emissions from 1997 to 2004, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6(11) :3423–3441, doi : [10.5194/acp-6-3423-2006](https://doi.org/10.5194/acp-6-3423-2006), 2006.
- van der Werf G. R., J. T. Randerson, L. Giglio, G. J. Collatz, M. Mu, P. S. Kasibhatla, D. C. Morton, R. S. DeFries, Y. Jin, and T. T. van Leeuwen. Global fire emissions and the contribution of deforestation, savanna, forest, agricultural, and peat fires (1997–2009), *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(23) :11707–11735, doi : [10.5194/acp-10-11707-2010](https://doi.org/10.5194/acp-10-11707-2010), 2010.
- Whiteman G., C. Hope, and P. Wadhams. Climate science : Vast costs of Arctic change, *Nature*, 499(7459) :401–403, doi : [10.1038/499401a](https://doi.org/10.1038/499401a), 2013.
- Wunch D., G. C. Toon, P. O. Wennberg, S. C. Wofsy, M. L. Fischer, O. Uchino, J. B. Abshire, P. Bernath, S. C. Biraud, J.-F. L. Blavier, C. Boone, K. P. Bowman, E. V. Browell, T. Campos, B. J. Connor, B. C. Daube, N. M. Deutscher, M. Diao, J. W. Elkins, C. Gerbig, E. Gottlieb, D. W. T. Griffith, D. F. Hurst, R. Jiménez, G. Keppel-Aleks, E. A. Kort, R. Macatangay, T. Machida, H. Matsueda, F. Moore, I. Morino, S. Park, J. Robinson, C. M. Roehl, Y. Sawa, V. Sherlock, C. Sweeney, T. Tanaka and M. A. Zondlo. Calibration of the Total Carbon Column Observing Network using aircraft profile data, *Atmospheric Measurement Techniques*, 3, 1351–1362, doi : [10.5194/amt-3-1351-2010](https://doi.org/10.5194/amt-3-1351-2010), 2010.
- Yamada T. Simulations of Nocturnal Drainage Flows by a q2l Turbulence Closure Model, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 40(1) :91–106, doi : [10.1175/1520-0469\(1983\)040<0091:SONDFB>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0469(1983)040<0091:SONDFB>2.0.CO;2), 1983.
- Yi C., Davis K. J., Bakwin P. S., Denning A. S., Zhang N., Desai A., Lin J. C., and C. Gerbig. Observed covariance between ecosystem carbon exchange and atmospheric boundary layer dynamics at a site in northern Wisconsin, *Journal of Geophysical Research*, 109, D08302, doi : [10.1029/2003JD004164](https://doi.org/10.1029/2003JD004164), 2004.
- Yver C., I. Pison, A. Fortems-Cheiney, M. Schmidt, F. Chevallier, M. Ramonet, A. Jordan, O. A. Søvde, A. Engel, R. E. Fisher, D. Lowry, E. G. Nisbet, I. Levin, S. Hammer, J. Necki, J. Bartyzel, S. Reimann, M. K. Vollmer, M. Steinbacher, T. Aalto, M. Maione, J. Arduini, S. O'Doherty, A. Grant, W. T. Sturges, G. L. Forster, C. R. Lunder, V. Privalov, N. Paramonova, A. Werner, and P. Bousquet. A new estimation of the recent tropospheric molecular hydrogen budget using atmospheric observations and variational inversion, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(7) :3375–3392, doi : [10.5194/acp-11-3375-2011](https://doi.org/10.5194/acp-11-3375-2011), 2011.

- Zhang M. H., Lin W. Y., Klein S. A., Bacmeister J. T., Bony S., Cederwall R. T., Del Genio A. D., Hack J. J., Loeb N. G., Lohmann U., Minnis P., Musat I., Pincus R., Stier P., Suarez M. J., Webb M. J., Wu J. B., Xie S. C., Yao M.-S., and J. H. Zhang. Comparing clouds and their seasonal variations in 10 atmospheric general circulation models with satellite measurements, *Journal of Geophysical Research*, 110, D15S02, doi : [10.1029/2004JD005021](https://doi.org/10.1029/2004JD005021), 2005.
- Zhuang Q., J. M. Melillo, D. W. Kicklighter, R. G. Prinn, A. D. McGuire, P. A. Steudler, B. S. Felzer, and S. Hu. Methane fluxes between terrestrial ecosystems and the atmosphere at northern high latitudes during the past century : A retrospective analysis with a process-based biogeochemistry model, *Global Biogeochemical Cycles*, doi : [10.1029/2004GB002239](https://doi.org/10.1029/2004GB002239), 2004.
- Zhang K., Feichter J., Kazil J., Wan H., Zhuo W., Griffiths A. D., Sartorius H., Zahorowski W., Ramonet M., Schmidt M., Yver C., Neubert R. E. M., and E. Brunke. Radon activity in the lower troposphere and its impact on ionization rate : a global estimate using different radon emissions, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11, 7817–7838, doi : [10.5194/acp-11-7817-2011](https://doi.org/10.5194/acp-11-7817-2011), 2011.

Cartes globales des PBLH simulées par LMDz-NP et LMDz-TD

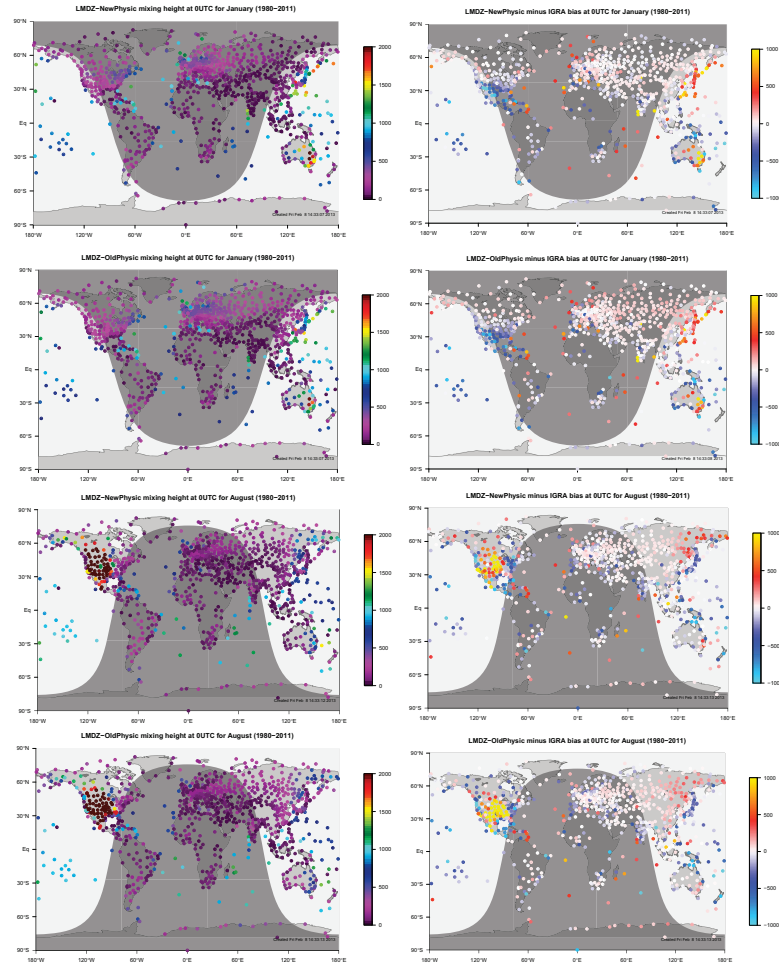


FIGURE A.1: Comparaison des PBLH simulées par LMDz-NP (figures sur la 1^{re} et 3^e ligne) et LMDz-TD (figures sur la 2^{re} et 4^e ligne) avec les données IGRA en janvier (deux premières lignes) et en août (deux dernières lignes) à 00h UTC. Les panels de gauche présentent les hauteurs de PBL et les panels de droite présentent la différence entre les PBLH simulées et mesurées.

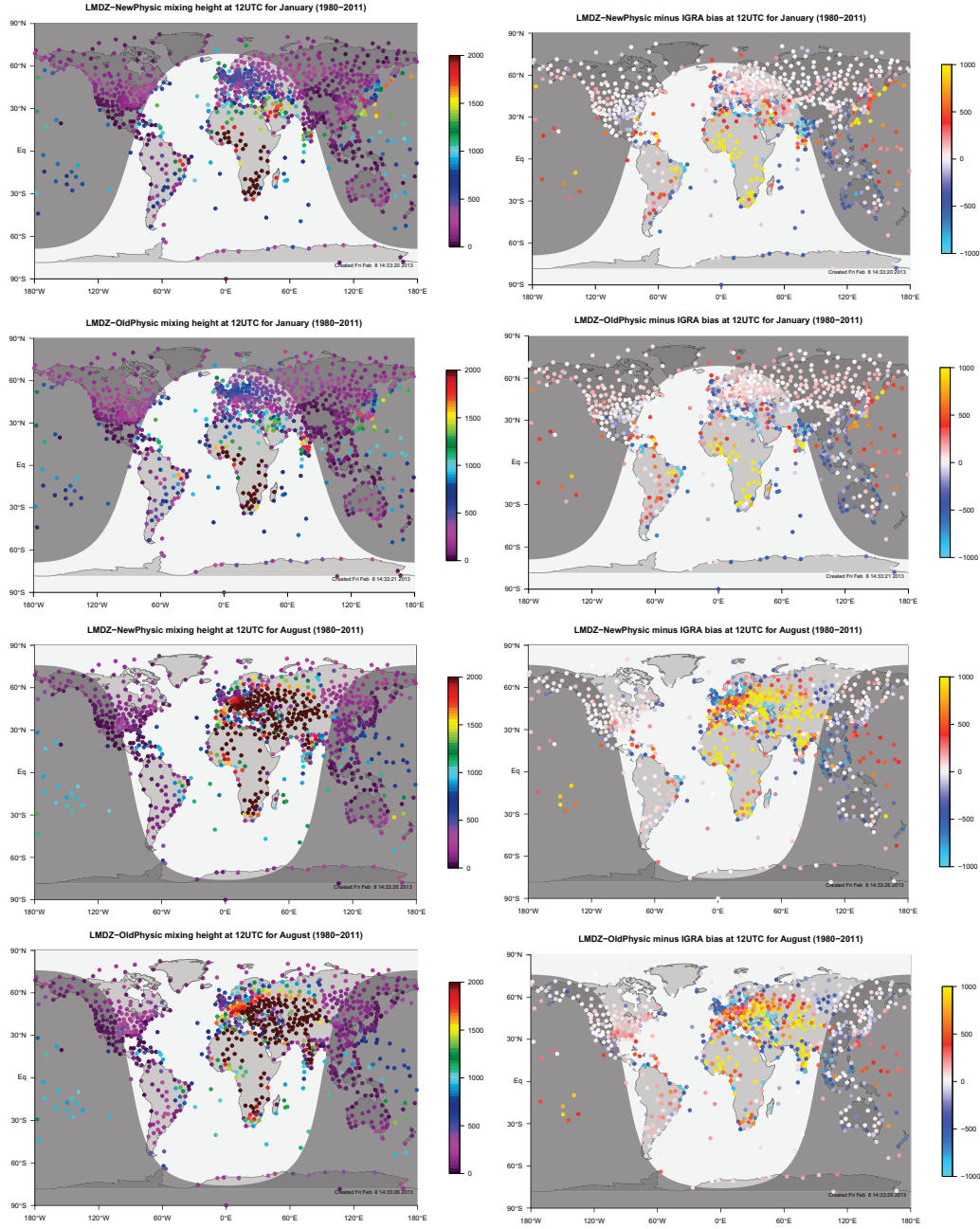


FIGURE A.2: Comparaison des PBLH simulées par LMDz-NP (figures sur la 1^{re} et 3^e ligne) et LMDz-TD (figures sur la 2^{re} et 4^e ligne) avec les données IGRA en janvier (deux premières lignes) et en août (deux dernières lignes) à 12h UTC. Les panels de gauche présentent les hauteurs de PBL et les panels de droite présentent la différence entre les PBLH simulées et mesurées.

Cycle saisonnier moyen de la PBLH en Europe à 00h et 12h UTC

Figure 8: Mean seasonal cycle of mixing height at 12:00 UTC in the transport models and derived from radiosondes at selected continental stations.

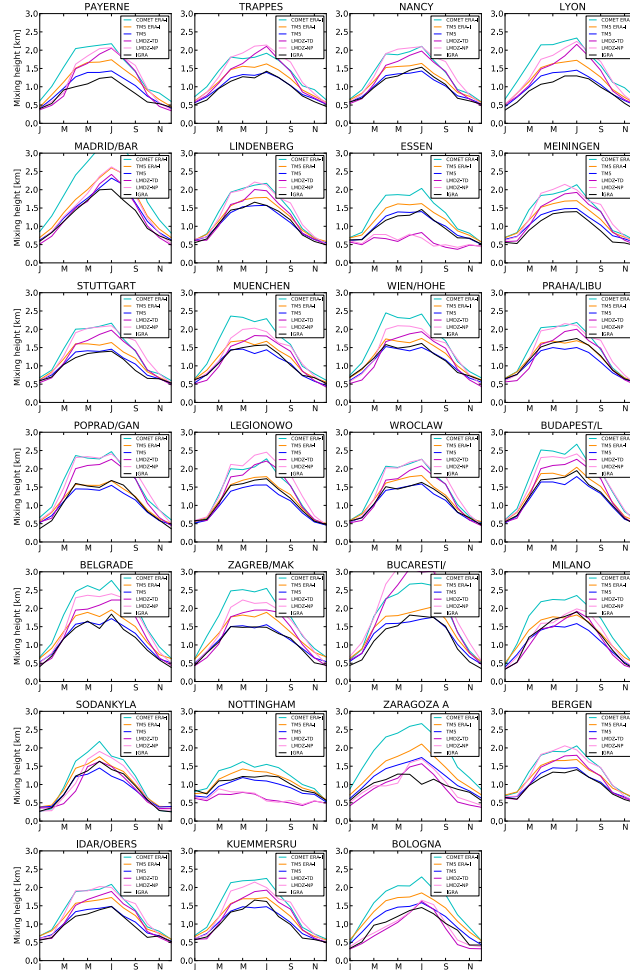


FIGURE B.1: Cycles saisonniers moyens de la PBLH à 00h UTC simulées par différents modèles de transport dont LMDz-TD (courbes violettes) et LMDz-NP (courbes roses) à 27 stations d'Europe occidentale.

Figure 9: Mean seasonal cycle of mixing height at 00:00 UTC in the transport models and derived from radiosondes at selected continental stations.

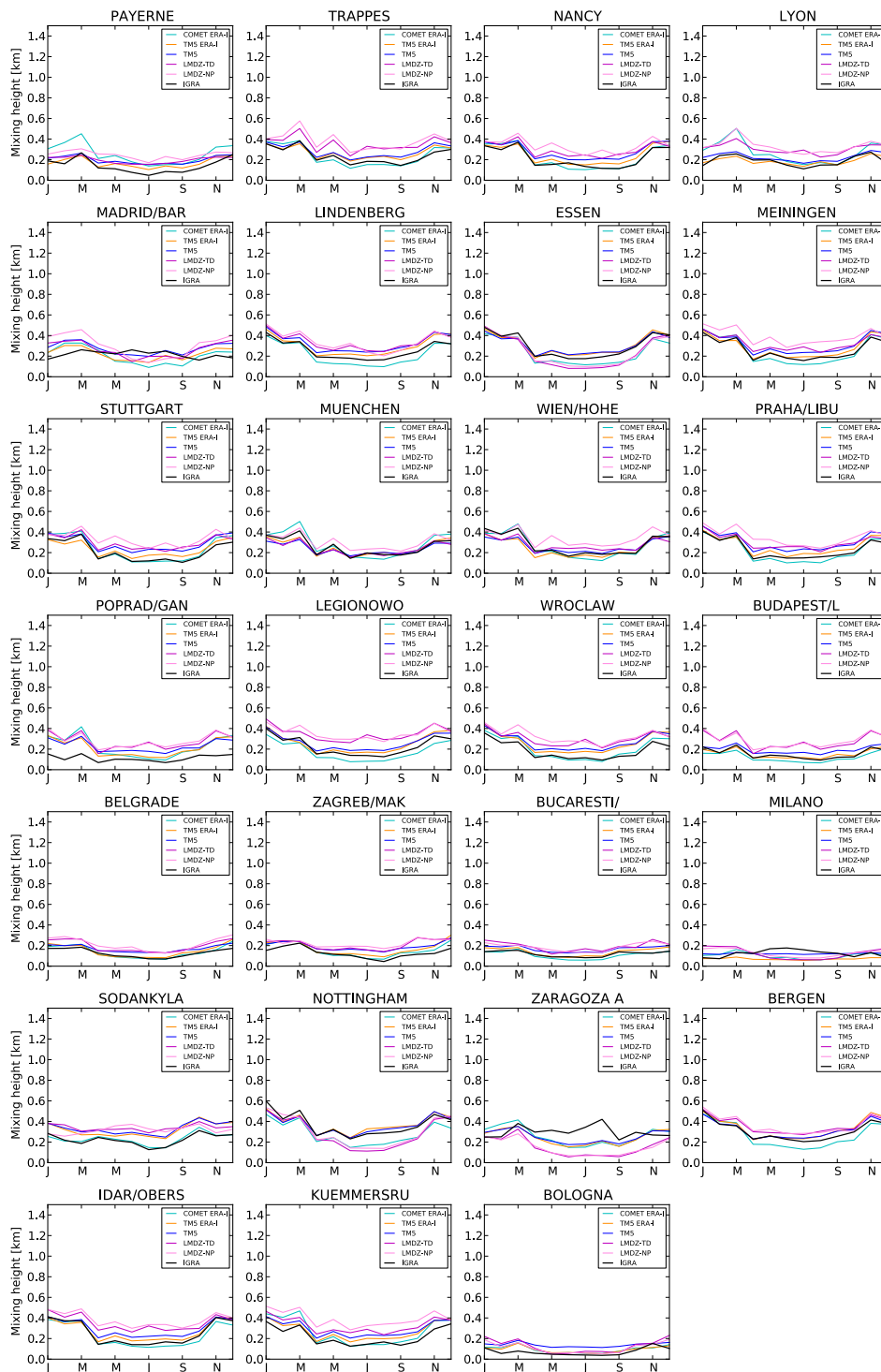


FIGURE B.2: Cycles saisonniers moyens de la PBLH à 12h UTC simulées par différents modèles de transport dont LMDz-TD (courbes violettes) et LMDz-NP (courbes roses) à 27 stations d'Europe occidentale.

Acronymes et abréviations

AGAGE	Advanced Global Atmospheric Gases Experiment
COP	Conférence des Parties
GES	Gaz à effet de serre
GFED	Global Fire Emissions Database
GIEC	Groupe d'experts Intergouvernemental sur l'Evolution du Climat
GOSAT	The Greenhouse Gases Observing Satellite
EDGAR	Emissions Database for Global Atmospheric Research
ENVISAT	Environmental Satellite
ESRL	Earth System Research Laboratory
IASI	Infrared Atmospheric Sounding Interferometer
INCA	Interactions avec la Chimie et les Aérosols (modèle chimie - aérosols couplé)
IPCC	Intergovernmental Panel on Climate Change
LES	Large Eddy Simulation
LMDz	Modèle du Laboratoire de Météorologie Dynamique avec une possibilité de Zoom
LMDzORINCA	Modèle couplant LMDz, ORCHIDEE et INCA pour simuler la chimie troposphérique
LSCE	Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement
MERLIN	The Methane Remote Sensing Lidar Mission
MetOp	Meteorological Operational satellite
NIES	National Institute for Environmental Studies of Japan
NOAA	National Oceanic and Atmospheric Administration
ORCHIDEE	ORganizing Carbon and Hydrology in Dynamic EcosystEms
Pg	Pérogramme, 10^{15} g
ppb	Part per billion, partie par milliard
ppm	Part per million, partie par million
PYVAR	Python Variationel
SACS	Simplified Atmospheric Chemistry System
SCIAMACHY	Scanning Imaging Absorption Spectrometer for Atmospheric Chartography
TCCON	Total Carbon Column Observing Network
Tg	Térogramme, 10^{12} g
TL	Tangent Linéaire
TransCom	The Atmospheric Tracer Transport Model Intercomparison Project
WDCGG	World Data Centre for Greenhouse Gases
ZCIT	Zone de Convergence Inter-Tropicale